

**Untersuchungen zur schwerioneninduzierten
Desorption von Wasserstoff aus Titan
unter Restgasatmosphäre mittels des
Kernreaktionsverfahrens**

Dissertation

zur

Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften

der

Abteilung für Physik
und Astronomie

an der Ruhr-Universität Bochum

von

MICHAEL SCHLUCKEBIER

aus Gevelsberg

Bochum 1984



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41546407_0068

Untersuchungen zur schwerioneninduzierten Desorption
von Wasserstoff aus Titan unter Restgasatmosphäre
mittels des Kernreaktionsverfahrens

DISSERTATION

zur

Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften

der

Abteilung für Physik
und Astronomie

an der Ruhr-Universität Bochum

von

Michael Schluckebier

aus Gevelsberg

Bochum 1984

Dissertation eingereicht am: 12. November 1984

Tag der mündlichen Prüfung: 19. Dezember 1984

Referent: Prof. Dr. D. Kamke

Korreferent: Prof. Dr. H. Neddermeyer

Inhaltsverzeichnis

Seite

<u>1. Einleitung</u>	1
1.1 Wasserstoff in Metallen	1
1.2 Aufgabenstellung	4
<u>2. Meßapparatur</u>	6
2.1 Teilchenbeschleuniger	6
2.2 Meßkammer	7
2.3 Detektoren und Elektronik	10
2.4 Auswahl und Präparation der Targets	12
2.5 Temperaturstabilität der Targets	13
<u>3. Durchführung der Messungen</u>	16
3.1 Meßmethode	16
3.1.1 Elastic-Recoil-Verfahren	16
3.1.2 Wirkungsquerschnitte	20
3.1.3 Tiefenauflösung	23
3.2 Targetdefinition	24
3.2.1 Deuteriumbeladung	24
3.2.2 Targetverunreinigungen	31
3.2.3 Thermische Desorption	36
3.2.4 Targetcharakterisierung	40
3.3 Ionenstrahlinduzierte Desorption	41
3.4 Testmessungen	47
<u>4. Theorie</u>	51
4.1 Theorie der Desorption	51
4.1.1 Mathematische Entwicklung	51
4.1.2 Qualitativer Vergleich von Theorie und Experiment	56
4.2 Modellerweiterung auf Gaseinfluß	60

<u>5. Meßergebnisse und Diskussion</u>	66
5.1 Einfluß des Restgases auf die Desorption	66
5.1.1 Druckvariation in Stickstoffatmosphäre	66
5.1.2 Haftkoeffizient der Restgasatmosphäre	68
5.2 Variation der Kammeratmosphäre	69
5.2.1 Reversible Blockade der Wasserstoff-desorption	69
5.2.2 Irreversible Blockade der Wasserstoff-desorption	72
5.3 Variation der Targettemperatur	74
5.4 Variation der Ionenstromdichte	76
5.5 Variation der Ionenenergie	78
5.6 Variation der Einschüßionen	80
<u>6. Diskussion der Ionenstrahlinduzierten Desorption</u>	82
6.1 Diffusion im Titanvolumen	82
6.2 Ratenverhältnis k_4/k_3	85
6.3 Hydridauflösung	88
6.4 Einfluß der Kammeratmosphäre	90
6.5 Maximale Desorptionsstromdichten	92
6.5.1 Dominanz der elektronischen Bremsung	92
6.5.2 Desorptionsquerschnitte	94
6.5.3 Ionenabhängigkeit der Desorptions-querschnitte	95
<u>7. Zusammenfassung</u>	100
<u>8. Literatur</u>	102

1. Einleitung

1.1 Wasserstoff in Metallen

Das Interesse an dem Verhalten von Wasserstoff in Metallen ist in den letzten Jahren stark angestiegen, bedingt durch seine Bedeutung in der Kernfusionstechnologie und der Energiewirtschaft /Li79a/. Seit langem ist bekannt, daß Wasserstoff im Metall zu der negativen Eigenschaft der Versprödung führt /Ch74, Gr78/. Positiv dagegen ist die Möglichkeit, Wasserstoff in bestimmten Metallen, insbesondere Elemente der chemischen Gruppen IIIa - Va, mit festkörperähnlichen Dichten zu binden. Auf diese Weise kann auf kleinem Raum Wasserstoff beliebig lange gespeichert und bei Bedarf durch thermische Desorption einer Nutzenanwendung (z. B. Energiegewinnung durch Umsetzung mit Sauerstoff) verfügbar gemacht werden /Wi78, Li79b/. In zukünftigen Kernfusionsreaktoren werden die das Wasserstoffplasma umgebenden Wände und die benötigten Divertter aus Metall bestehen /Be79, Gr79/, wobei die Plasma-Wand-Wechselwirkung entscheidende Bedeutung für die technologische Realisierung der kontrollierten Kernfusion in einem Reaktor hat ("First-Wall-Problem").

Die genannten Anwendungsmöglichkeiten beruhen auf dem speziellen Löslichkeits- und Diffusionsverhalten von Wasserstoff in Metallen. Viele Forschungsgruppen haben daher die unterschiedlichsten Aspekte von Metall-Wasserstoff Systemen untersucht. Zusammenfassende Darstellungen liegen inzwischen auch in Buchform vor /Mu68, Vö75, Fr76, Th76, Al78, Ga81/.

Hohe Flüsse energiereicher leichter Ionen treffen in Fusionsmaschinen auf die Wände, werden im Metall abgebremst, können diffundieren und auch das Metall ggf. wieder verlassen /Ma78, Be80, Ro81a, Ro81b/. Das Verhalten des Wasserstoffs in solchen Systemen wird u. a. von dem Metall selbst /Mc75, Bo77/, der Metalltemperatur, der Wasserstoffionenenergie und dem -fluß sowie der Wasserstoffkonzentration im Metall beein-

flußt. Eine Gruppe von Metallen löst Wasserstoff exotherm. Diese Metalle sind daher in der Lage, Wasserstoff in Konzentrationen bis hin zum stöchiometrischen Hydrid durch die Oberfläche aufzunehmen (z. B. Ti, Zr, Nb, Ta). Die zweite Gruppe löst Wasserstoff endotherm, weshalb dort die Wasserstoffkonzentration, im Gleichgewichtsfall zwischen ein- und austretendem Wasserstoffstrom, extrem niedrig ist (z. B. Fe, Ni, Cu). Durch Implantation der Wasserstoffatome können dennoch weit höhere Konzentrationen erreicht werden, als solchen Gleichgewichtszuständen entspricht.

Für die Erforschung des Verhaltens des Wasserstoffs im Metall sind eine Reihe von Untersuchungsmethoden entwickelt worden. Man unterscheidet zwischen destruktiven und nicht-destruktiven Verfahren. Zu der ersten Gruppe gehört das chemische Ätzen der Oberfläche oder das Abtragen durch Zerstäubung mittels schwerer Ionen im 10 keV-Bereich (Sputtering) mit sukzessiver Beobachtung der neuen Oberfläche mit Hilfe von z. B. Elektronenmikroskopen, Sekundärionen- oder Elektrospektroskopie, um z. B. Strukturveränderungen des Wirtsmetalls durch den Wasserstoff oder die Konzentrationsverteilung des Wasserstoffs in Abhängigkeit von der Tiefe im Metall zu messen. Zu der zweiten Gruppe sind integrale Methoden zur Analyse der im Metall vorhandenen Wasserstoffmenge zu zählen, wie beispielsweise die Messung der Gewichtszunahme durch die Wasserstoffaufnahme oder der Nachweis der Menge des aus dem Material desorbierten Wasserstoffs mittels Restgasanalyse. Sehr große Bedeutung haben jedoch vor allem Verfahren mit hochenergetischen Ionen erlangt. Die Verteilung des Wasserstoffs im Metall kann mit ihnen ortsempfindlich und quantitativ gemessen werden. Die als Kernreaktionsverfahren bezeichnete Methode ist in den vergangenen Jahren mit vielen verschiedenen Kernreaktionen erprobt und für unterschiedliche Zielsetzungen, auch für andere Implantate als Wasserstoff, ausgearbeitet worden. Eine zusammenfassende Darstellung findet sich bei Böttiger /B678a/.

Je nach Fremdatomsorte und ihrem Tiefenbereich im Absor-

ber (Material, das das Implantat aufnimmt oder für dessen Zusammensetzung man sich interessiert) sind unterschiedliche Kernreaktionen auszuwählen, von denen hier eine Auswahl der gebräuchlichsten genannt sei: ${}^2\text{H}(\text{d},\text{p}){}^3\text{H}$ /Mö77a/, ${}^2\text{H}({}^3\text{He},\alpha){}^1\text{H}$ /Bö78b/, ${}^2\text{H}({}^3\text{He},\text{p}){}^4\text{He}$ /Di79/, ${}^1\text{H}({}^{15}\text{N},\alpha\gamma){}^{12}\text{C}$ /Ba80b/, ${}^1\text{H}({}^{19}\text{F},\alpha\gamma){}^{16}\text{O}$ /Le73/, ${}^1\text{H}({}^{12}\text{C},\text{p}){}^{12}\text{C}$ /Do79/ oder ${}^1\text{H}({}^{35}\text{Cl},\text{p}){}^{35}\text{Cl}$ /Ec78/; die beiden letzten auch für Deuterium. Die zu verwendenden Ionenstrahlen variieren über einen weiten Bereich bezüglich ihrer Masse, Kernladung sowie Energie (Größenordnung $10^5 - 10^7$ eV). Die aufgezählten Parameter bestimmen die Stärke der nuklearen und elektronischen Bremsung der Ionen in Materie (Strahlenschäden, Ionisation), weshalb der Energieübertrag auf die Wasserstoffatome ebenfalls entsprechend variiert. Der Ionenstrahl soll den Wasserstoff aber nachweisen, ohne die Verteilung des Wasserstoffs im Metall zu beeinflussen ("Nicht-destruktive Methode").

Die Unversehrtheit einer Fremdatomverteilung unter Ionenbeschuß wird allgemein damit begründet, daß die Ionen wegen ihrer hohen Energie im Bereich der Implantate kaum Strahlenschäden verursachen, die die thermische Diffusion der Fremdatome oder das Freisetzen und Einfangen der Implantate an Haftstellen beeinflussen könnten. Allerdings ist auch schon bei einigen Messungen eine Abnahme der Deuteronenkonzentration im Absorber unter Ionenbeschuß beobachtet worden, obwohl sie aus thermischen Gründen auszuschließen war; z. B. in BeO durch ${}^3\text{He}$ - bzw. ${}^1\text{H}$ -Beschuß /Sc79/, in Mo durch ${}^3\text{He}$ -Beschuß /Sc80a/ oder in Graphit durch ${}^1\text{H}$ -, ${}^3\text{He}$ - und ${}^{14}\text{N}$ -Beschuß /Ro80b/, wobei die Ionenreichweite immer deutlich größer als der Tiefenbereich der Deuteronenverteilung war. Strahlenschäden waren daher im Tiefenintervall der Deuteronen vernachlässigbar.

Falls dieser Effekt der Konzentrationsabnahme durch Ionenbeschuß ein inhärentes Problem des Kernreaktionsverfahrens ist, muß er berücksichtigt werden, um Fehlinterpretationen bezüglich des Implantatverhaltens zu vermeiden. Außerdem dürfte das Kernreaktionsverfahren nicht mehr ohne weiteres zu

den nicht-destruktiven Methoden gezählt werden, da es ggf. die Wasserstoffverteilung im Absorber zerstören kann. In der Literatur sind keine Untersuchungen dokumentiert, die sich mit einer solchen eventuellen Ionenstrahlinduzierten Desorption von Wasserstoff aus Metall befassen. Daher sind in dieser Arbeit spezielle Experimente zur Klärung der Frage nach einem Einfluß des Ionenstrahls auf den Wasserstoff im Metall durchgeführt worden.

1.2 Aufgabenstellung

Für die Untersuchungen zum Einfluß des Ionenstrahls auf den Wasserstoff im Metall mußten experimentelle Untersuchungsmethoden erarbeitet werden, die eine definierte Trennung zwischen Wirkungen des Ionenstrahls und thermischen Beiträgen zur Diffusion und Desorption des Wasserstoffs erlauben.

Die geplanten Experimente erforderten die Entwicklung eines speziellen Targets (metallischer Absorber), das zum einen den Wasserstoff gut aufnimmt und zum anderen ein definiertes Freisetzen durch die Oberfläche gestattet sowie thermisch kontrollierbar ist. Das Target sollte bezüglich der Wasserstoffkapazität, der Verunreinigungen und der thermischen Desorption des Wasserstoffs analysiert werden. Die Kenntnis dieser Targetdaten ist als Voraussetzung für gezielte Untersuchungen der Wasserstoffabnahme durch den Ionenbeschuß und die Übertragbarkeit auf andere Materialien anzusehen.

Die Arbeiten mußten in einer Ultrahochvakuumkammer (UHV-Kammer, $p_{\min} \approx 10^{-8}$ hPa) durchgeführt werden, um erstens Einflüsse von Kohlenwasserstoffen im Restgas auf die Desorption des Wasserstoffs auszuschließen und zweitens gezielte Untersuchungen bezüglich der Zusammensetzung und des Druckes der Kammeratmosphäre zu ermöglichen.

Hauptziel der Untersuchungen war die Bestimmung der Ab-

hängigkeiten der Wasserstoffkonzentrationsabnahme von den verschiedenen Ionenstrahlparametern, dazu gehören Stromdichte, Energie und die Ionen selbst, sowie von der Targettemperatur und der Kammeratmosphäre. Der Wasserstoff im Target sollte während des freisetzenden Ionenbeschusses laufend nachgewiesen werden, um das System in einem kontinuierlichen Zustand der Wasserstoffabnahme analysieren zu können. Dies erfordert einen Ionenstrahl, der sowohl den Wasserstoff nachweisen als auch in genügender Intensität freisetzen kann.

Weiterhin war es Aufgabe dieser Arbeit, ein phänomenologisches Modell zu entwickeln, das die Ionenstrahlinduzierte Desorption des Wasserstoffs qualitativ und quantitativ beschreibt. Außerdem war gefordert, durch Vergleich der Modellparameter mit den experimentellen Ergebnissen Desorptionsquerschnitte zu ermitteln. Aus den gemessenen Abhängigkeiten sollten Aussagen über mögliche physikalische Mechanismen der Ionenstrahlinduzierten Desorption gewonnen werden.

2. Meßapparatur

2.1 Teilchenbeschleuniger

Für die Durchführung der Messungen werden Ionenstrahlen mit Energien von 10 keV bis 20 MeV benötigt. Daher werden drei Teilchenbeschleuniger verwendet, und zwar für die Im-

plantation der Deuteronen in das Target ein 400 kV-Beschleuniger (Fa. Haefely) und eine 40 kV-Ionenquelle (Institutseigenbau) /Sc84/ sowie für das Freisetzen und den Nachweis des Wasserstoffs ein 4 MV-Tandem-Beschleuniger (Fa. Radiation Dynamics).

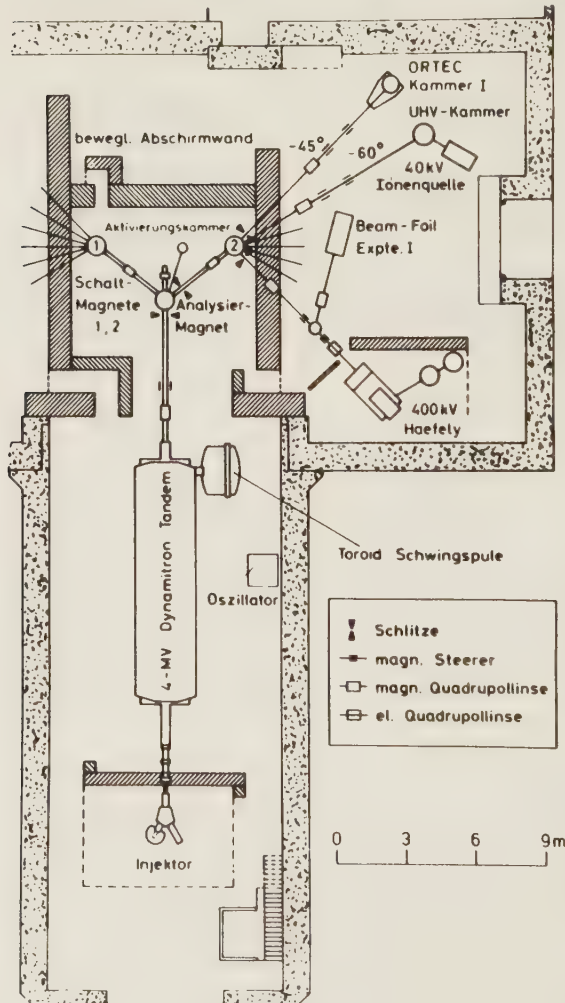


Fig. 2.1 zeigt den generellen Aufbau der Beschleunigeranlage. Die Experimente wurden in der UHV-Meßkammer (Position -60°) durchgeführt, die von beiden Hochenergiebeschleunigern über dasselbe Strahlführungssystem erreicht wird; dadurch ist gewährleistet, daß die Strahlflecke der

Fig. 2.1: Beschleunigeranlage

Implantation sowie der Analyse und des Freisetzens des Wasserstoffs deckungsgleich sind. Die beschleunigten Ionen werden durch einen Analysiermagneten nach Energie und Masse getrennt, so daß ein isotonenreiner Ionenstrahl nach Fokussierung mit einem magnetischen Quadrupoldublett und Durchlaufen von zwei Paaren magnetischer Steerer und drei Kollimatorblenden in die Meßkammer auf das Target gelangt.

Die 40 kV-Ionenquelle, die einen ebenfalls isotonenreinen und monoenergetischen Ionenstrahl liefert, ist über den 60° -Flansch der UHV-Kammer mit ihr verbunden. Neben einem Analysiermagneten sind dort drei elektrische Steerer, eine elektrostatische Linse und zwei Kollimatorblenden als Strahlführungselemente eingesetzt.

Da die Meßkammer von allen drei Beschleunigern erreicht wird, ist ein Ausbau der Targets nach der Implantation nicht nötig, wodurch Positionierungsprobleme und mögliche Verunreinigungen bei der Targetmanipulation ausgeschlossen sind.

2.2 Meßkammer

Der Aufbau der UHV-Kammer ist schon im Detail beschrieben worden /Pf80/, daher wird hier nur auf die für diese Messungen wesentlichen Elemente und speziellen Ergänzungen eingegangen. Fig. 2.2 zeigt eine schematische Darstellung der Kammer.

Zwei kreisförmige Kollimatorblenden mit einem Durchmesser von 1,5 mm begrenzen den Ionenstrahl vor der Meßkammer. Innerhalb der Kammer ist in einem Abstand von 11,5 cm vor der Targetoberfläche eine verschiebbare Kollimatorhalterung angebracht, die die Auswahl zwischen drei kreisförmigen Blenden der Durchmesser 1,5 mm, 1 mm und 0,5 mm gestattet. Die gewählte Blende definiert den Querschnitt des Ionenstrahls auf dem Target.

Die Komplexität der mit dem Target in Verbindung stehenden Einrichtungen (Kühlung, Heizung, Thermoelemente) steht einer direkten Targetstrommessung entgegen, so daß ein rotierender Auffänger (RA, Fig. 2.2) vor dem Target verwendet wird. Zur Abschirmung gegen die vom Target beim Schwerionenbeschuß zurückgestreuten hochenergetischen Elektronen ($E \leq 1$ keV, /Sa83/) ist zwischen Target und rotierendem Auffänger eine 26 nm ($\approx 50 \mu\text{g cm}^{-2}$) dicke Goldfolie installiert. Der Schwerionenstrahl brennt ein Loch seines Durchmessers in sie, der Rest kann jedoch die Elektronen sehr gut abhalten. Die Meßunsicherheit des Ionenstroms beträgt ca. $\pm 3\%$.

Die Kammer ist so gebaut, daß die Detektoren für den Kernreaktionsnachweis unter den Winkeln 30° , 90° , 120° , 140° und 150° bezüglich der Einschußrichtung der Ionen angebracht werden können. Weiterhin ist es mit einer Schiebedurchführung möglich, Folien als Targets im Kammerzentrum zu positionieren.

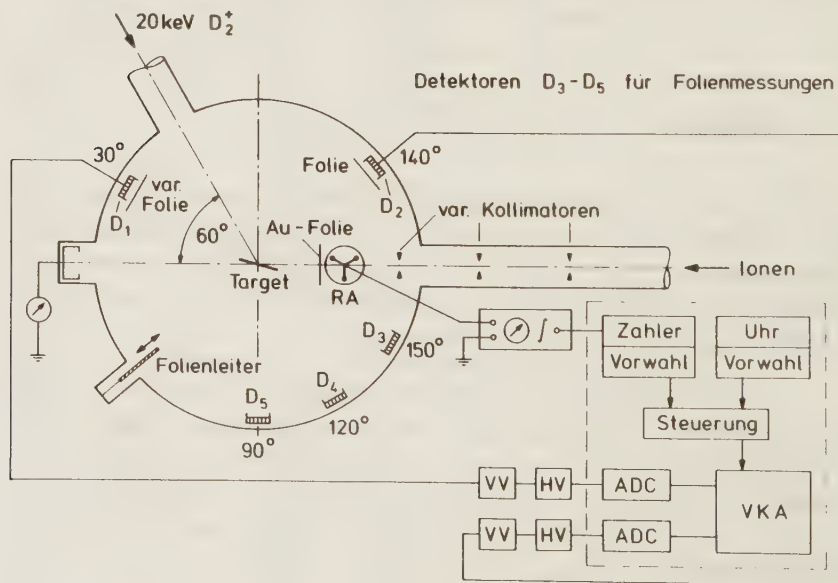


Fig. 2.2: Meßkammer mit Anordnung der Detektoren und Blockschaltbild der Elektronik (Erläuterungen im Text)

Mittels eines schon in früheren Untersuchungen verwendeten Aufbaus /Sc80b/ kann die Meßkammeratmosphäre mit beliebigen Gasen aus Stahlflaschen angereichert und der Druck während des Experiments in den Grenzen von $p_o \approx 2 \cdot 10^{-8}$ hPa ($\approx 2 \cdot 10^{-8}$ mbar) bis $p_{\max} \approx 2 \cdot 10^{-4}$ hPa im Gleichgewicht zwischen Gaseinlaß und Abpumpen variiert werden.

Die Totaldruckmessung geschieht mit zwei Ionisationsvakuummetern (IM 210, IM 51; Fa. Leybold-Heraeus), deren Meßbereich von 10^{-2} hPa bis 10^{-12} hPa reicht. Beide Geräte stimmen im Druckbereich von 10^{-8} hPa nur bis auf einen Faktor 2 überein, zeigen aber Druckänderungen mit einer Meßunsicherheit von ca. 10% an. Die Anzeigenskalen gelten für Stickstoff oder Luft. Für andere Gase müssen die abgelesenen Werte mit den Korrekturfaktoren der Tabelle 2.1 multipliziert werden.

Gasart	Korrekturfaktor
Helium	6,90
Wasserstoff	2,40
Stickstoff	1,00
Argon	0,83
Kohlendioxid	0,69

Tabelle 2.1:
Korrekturfaktoren
nach Angaben der
Fa. Leybold-Heraeus

Der Fehler der Druckmessung ist mit einem Faktor 3 großzügig abgeschätzt; für Stickstoff ist er kleiner, weil die Systeme auf Stickstoff normiert sind.

Die Zusammensetzung der Restgasatmosphäre wird mit einem Quadrupol-Massenspektrometer (QMG 111 B, Fa. Balzers) analysiert, dessen Meßbereich die Masse/Ladung-Verhältnisse $m/q \leq 100$ u/e abdeckt. Der kleinste meßbare Partialdruck liegt bei $p_{\min} \approx 10^{-10}$ hPa. Für die Restgasspektren dürfen die Korrekturfaktoren der Tabelle 2.1 in erster Näherung übernommen werden.

Fig. 2.3 zeigt ein Restgasspektrum der Kammer unter Ausgasbedingungen bei dem Basisdruck von $p_o \approx 2 \cdot 10^{-8}$ hPa. Der

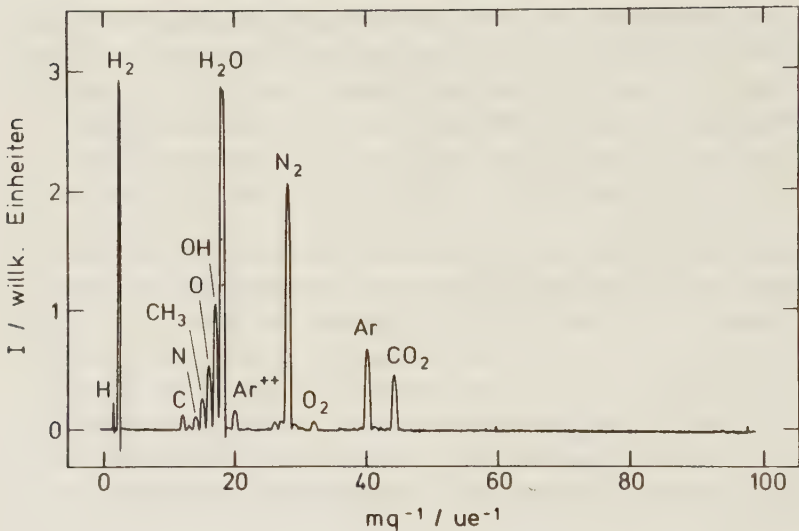


Fig. 2.3: Restgasspektrum der UHV-Kammer unter Ausgangsbedingungen von $p_0 \approx 2 \cdot 10^{-8}$ hPa

Wasserstoff stammt aus den Wänden der Edelstahlkammer. Wasser, Stickstoff, Sauerstoff und Kohlendioxid gelangen beim Öffnen der Kammer aus der Umgebungsluft hinein, Argon wird als Füllgas verwendet. Kohlenwasserstoffe sind im Restgas nur unbedeutend gering vorhanden; dies ist wichtig für Desorptionsexperimente unter Ionenbeschuß, weil damit Kohlenstoffaufbau auf dem Target durch Ionenbeschuß /Sc80b/ vernachlässigbar klein ist.

2.3 Detektoren und Elektronik

Zum Nachweis der aus Kernreaktionen oder Streuprozessen stammenden geladenen Teilchen dienen Oberflächensperrschichtdetektoren der Fa. Ortec. Die aus den Kernreaktionen $^2\text{H}(d,p)^3\text{H}$, $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$, $^{14}\text{N}(d,p)^{15}\text{N}$ und $^{16}\text{O}(d,p)^{17}\text{O}$ sowie den elastischen Streuungen $^1\text{H}(X,p)X$ und $^2\text{H}(X,d)X$ [mit X : ^{12}C , ^{16}O , ^{28}Si oder ^{63}Cu] ejektierten Protonen und Deuteronen werden in

dem Detektor D_1 (Fig. 2.2), der hinter einer Al-Folie unter einem Streuwinkel von $\vartheta_1 = 30^\circ$ positioniert ist, nachgewiesen. Die Al-Folie wird benötigt, um die am massiven Target elastisch gestreuten Einschüßionen, die aufgrund ihrer hohen Rate den Detektor unbrauchbar machen würden, zurückzuhalten. Die Folienhalterung ist auf einer Schiebedurchführung montiert, so daß unter Vakuumbedingungen die Folie mit der für das jeweilige Meßverfahren nötigen Dicke vor den Detektor geschoben werden kann. Die verschiedenen Dicken waren: $30\text{ }\mu\text{m}$ ($\approx 8,1\text{ mg cm}^{-2}$), $12\text{ }\mu\text{m}$, $6\text{ }\mu\text{m}$ und $5\text{ }\mu\text{m}$. Der Raumwinkel des Detektors beträgt $\Delta\omega_1 = 0,31\text{ msr}$.

Ein weiterer Detektor D_2 ist unter einem Winkel $\vartheta_2 = 140^\circ$ installiert und ebenfalls, aus den oben schon genannten Gründen, mit einer Al-Folie ($s_F = 30\text{ }\mu\text{m}$) bedeckt. Er dient gleichfalls dazu, die Ejektile obiger Kernreaktionen nachzuweisen; speziell bei der Deuteronenimplantation und dem gleichzeitigen Nachweis über die $^2\text{H(d,p)}^3\text{H}$ Reaktion findet er Verwendung. Der Raumwinkel beträgt hier $\Delta\omega_2 = 0,38\text{ msr}$.

Unter $\vartheta_3 = 150^\circ$ befindet sich der Detektor D_3 ($\Delta\omega_3 = 0,16\text{ msr}$), der für Foliendickenbestimmungen über die Rutherford-Streuung (RBS) von ^4He -Kernen der Energie $E = 2\text{ MeV}$ benutzt wird. Er wird ohne Folie betrieben und kann ggf. durch ein schwenkbares Edelstahlblech abgeschirmt werden.

Für die Durchführung der Wirkungsquerschnittsmessungen (Abs. 3.1.2) wurden vorübergehend Detektoren unter den Winkeln 90° und 120° installiert.

Die Meßelektronik besteht aus Vorverstärkern VV (Tennelec TC 163), Hauptverstärkern HV (Tennelec TC 205) und Analog-Digital-Convertern ADC innerhalb eines CAMAC-Crates in Verbindung mit einer PDP 11/40 Rechenanlage (Fa. DEC), mit der die impulshöhenanalysierten Spektren erstellt werden. Von dort werden die kompletten Spektren oder auch die Integrale über eingestellte Kanalbereiche, die Meßzeit und die Inhalte von zwei Impulszählern zu einer weiteren Rechenanlage (PDP 10, Fa. DEC) übertragen, wobei diese Ausgabe (nicht die der kom-

pletten Spektren) in einem vorgegebenen Zeitraster automatisch erfolgen kann. Mit der PDP 10 Rechenanlage werden die Meßdaten weiterverarbeitet und auf Magnetband abgespeichert.

2.4 Auswahl und Präparation der Targets

Voraussetzung für die geplanten Experimente ist, daß der Wasserstoff zunächst in hoher Konzentration im Targetmaterial vorliegt, um ein Freisetzen des Wasserstoffs durch den Ionenstrahl gut messen zu können. Außerdem sollen die Ionen möglichst überall im Metall den gleichen Bremsquerschnitt besitzen, um die gleiche Energiedeposition auf alle Targetatome zu gewährleisten. Dies fordert dünne Metallfolien als Wasserstoffträger. Die Wasserstofflöslichkeit des Trägermetalls muß im untersuchten Temperaturbereich für den Aufbau der geforderten hohen Wasserstoffkonzentrationen ausreichen. Fig. 2.4

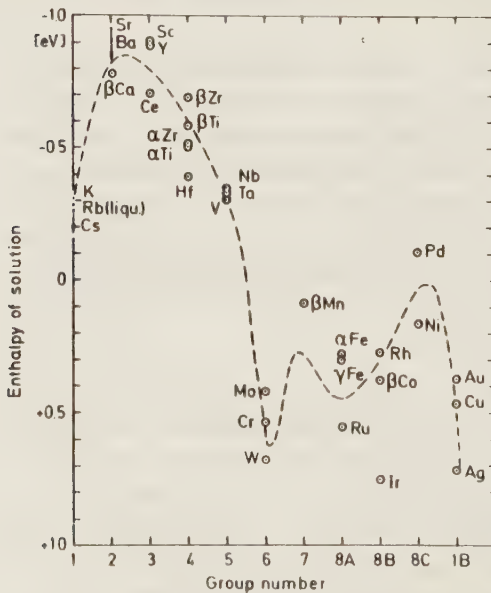


Fig. 2.4: Löslichkeitsenthalpie von Wasserstoff in Metall als Funktion der Gruppennummer

/Mc73/ zeigt die Löslichkeitsenthalpie vieler Metalle. Von den technisch interessanten Metallen haben Titan und Zirkon die größte Wasserstofflöslichkeit. Wegen der größeren Bedeutung von Titan in der Fusions-technologie wurde Titan ausgewählt.

Die Metalltemperatur ist für die Messung des Diffusions- und Desorptionsverhaltens ein entscheidender Parameter. Da die Temperatureinstellung einer Folie sehr

schwierig ist, wird hier so vorgegangen, daß ein dünner Titanfilm auf einen massiven Metallblock aufgedampft wird, dessen Temperatur kontrolliert werden kann. Das Material des Blocks muß ein endothermer Wasserstofflösler sein, damit der im Titan befindliche Wasserstoff nicht in den Block diffundiert. Die Wahl fiel auf Nickel, da dessen Daten bezüglich Löslichkeit, Diffusion, Desorption und Implantation des Wasserstoffs aus früheren Untersuchungen /Pf80/ besser als die anderer Metalle bekannt sind.

Verwendet werden polykristalline, vakuumgeschmolzene Ni-Scheiben (MARZ-Grad ($\approx 99,995\%$ Ni; Fa. MRC) mit einem Durchmesser von 9 mm und einer Dicke von 1 mm. Die Oberfläche wird durch Polieren mit Diamantpolierpaste bis hinunter zu einer Korngröße von $0,25\ \mu\text{m}$ geglättet. Anschließend wird in einer Aufdampfanlage eine ca. 90 nm dicke Titanschicht aufgebracht. Zur genauen Dickenbestimmung wird gleichzeitig mit den Nickeltargets eine Kohlenstoffolie mit Titan in derselben Dicke bedampft. Diese Schichtdicke wird dann durch Rutherford-Rückstreuung (RBS) mit ^4He -Ionen der Energie $E = 2\ \text{MeV}$ auf $\pm 3\%$ /Mu81/ bestimmt.

2.5 Temperaturstabilität der Targets

Um die thermisch initiierte Desorption von der ionenstrahlinduzierten abzugrenzen, ist die Einstellung und Messung einer definierten Targettemperatur Voraussetzung für die Durchführung der Experimente. Dies geschieht mittels einer geeigneten Targethalterung und zugehörigen Versorgungs- und Meßsystemen, die schon im Detail dargestellt worden sind /Pf80/. An dieser Stelle wird nur noch das Wesentliche kurz erwähnt; außerdem werden spezielle Änderungen beschrieben.

Die Targets sind in eine Kupferplatte eingelassen und durch Kupferbügel am Rand befestigt, so daß ein guter thermischer Kontakt gewährleistet ist. Dieses System wird auf einen Kühl-/Heizblock montiert, der an einer Hub-/Drehdurchführung

befestigt ist. Der Maximalhub von 25 mm gestattet es, zwei Targets in der Meßkammer zu installieren und in den Strahlengang zu bringen. Jedes Target kann fünf Implantationsflecke aufnehmen, so daß zehn Positionen zur Verfügung stehen. Die Targets können durch flüssigen Stickstoff, der durch den Kühlblock hinter dem Target fließt, gekühlt und durch eine rückwärtig angebrachte Elektronenkanone geheizt werden. Der verfügbare Temperaturbereich unter Ionenstrahlbedingungen liegt zwischen $130 \text{ K} \leq T \leq 650 \text{ K}$. Die Temperatur wird mit drei NiCr-Konstantan-Thermoelementen (Fa. Degussa) gemessen, die an der Kupferplatte unmittelbar neben den Targets befestigt sind. Die Thermospannungen sind die Eingangssignale einer elektronischen Regelung des Stickstoffdurchflusses und der Elektronenkanone für die Konstanthaltung der Temperatur. Die Temperaturschwankungen der Targets liegen bei ca. $\pm 2 \text{ K}$.

Allerdings ist es nicht möglich, Meßwerte über eine mögliche Temperaturdifferenz ΔT zwischen der Position der Thermoelemente und dem Auftreffbereich des Ionenstrahls zu erhalten. Daher soll eine theoretische Abschätzung Aufschluß darüber geben. Der stationäre Fall der Wärmeleitungsgleichung lautet:

$$Q = L \cdot \Delta T \cdot \Delta F \cdot \Delta l^{-1} \quad (2.1)$$

Q ist die aufgebrachte Ionenstrahlleistung, L die Wärmeleitfähigkeit, ΔF die Fläche, durch die die Energie hindurchtritt, und Δl die Länge, über die die Temperatur abfällt.

Fig. 2.5 veranschaulicht die geometrischen Verhältnisse des Targets. Bei typischen Strahlfleckausdehnungen von 3 mm^2 ergibt sich unter der näherungsweisen Annahme eines mittleren Temperaturkegels mit einem symmetrischen Winkel von 45° eine effektive Fläche von $\Delta F = 7 \text{ mm}^2$. Die gemessene Temperatur der Kupferplatte wird als konstant betrachtet, und für den besonders ungünstigen Wert von $Q = 10 \text{ W}$ resultiert in Verbindung mit der Targetdicke $\Delta l = 1 \text{ mm}$ und $L_{\text{Ni}} = 90 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1} / \text{We78/}$ eine Temperaturdifferenz $\Delta T = 16 \text{ K}$. Dieser Wert behindert

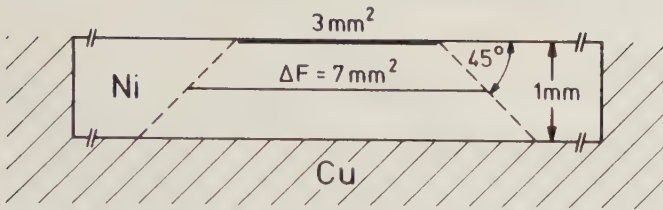


Fig. 2.5: Schnitt durch den Absorber

die Experimente nicht, zumal er in der Überwiegenden Zahl der Messungen deutlich kleiner ist (Faktor 2 - 5); er wird aber bei der späteren Auswertung entsprechend berücksichtigt.

3. Durchführung der Messungen

3.1 Meßmethode

In den Experimenten zu dieser Arbeit werden für die Analyse der Titanschicht und die Desorption des Wasserstoffs hochenergetische Ionenstrahlen verwendet. Der für das Freisetzen des Wasserstoffs verantwortliche Ionenstrahl muß mehrere Anforderungen erfüllen. Erstens muß er möglichst variabel in bezug auf Ionensorte, Energie und Stromdichte sein, um ein breites Untersuchungsspektrum zu gestatten. Zweitens muß er gleichzeitig den Wasserstoff nachweisen; denn um definierte Ergebnisse zu erhalten, ist bei diesen Desorptionsexperimenten eine kontinuierliche, ununterbrochene Bestrahlung unumgänglich, wie in dieser Arbeit gezeigt werden wird. Darüberhinaus soll das Meßverfahren genügend empfindlich für die Bestimmung der Konzentration des Wasserstoffs in Abhängigkeit von der Tiefe im Target sein, um Aussagen über mögliche Dichteprofiländerungen des Wasserstoffs durch den Ionenstrahl machen zu können.

3.1.1 Elastic-Recoil-Verfahren

Aus den oben genannten Gründen wurde das Energieanalyse-Verfahren /Hu75, Bø78a/, und hier speziell "Elastic-Recoil-Detection (ERD)", ausgewählt und an die experimentellen Bedingungen angepaßt. Bei ERD wird ein schweres Projektil (hier: ^{12}C , ^{16}O , ^{28}Si und ^{63}Cu) hoher Energie (hier: $E = 4 - 20$ MeV) auf einen leichten Targetkern geschossen. Bei der stattfindenden elastischen Streuung wird nicht, wie bei der Rutherford-Streuung sonst üblich, das gestreute Projektil detektiert, sondern der angestoßene Targetkern. Der Energieübertrag E' auf den Targetkern kann in Abhängigkeit von der Projektilmasse m_1 , der Targetkernmasse m_2 und dem Streuwinkel des Targetkerns ϑ im Laborsystem geschrieben werden als:

$$E' = 4 \cdot \frac{m_1 \cdot m_2}{(m_1 + m_2)^2} \cdot (\cos \vartheta)^2 \cdot E \quad (3.1)$$

Dabei gibt es einen Grenzwinkel $\vartheta_{\max} = 90^\circ$, bis zu dem Streuung möglich ist; darüberhinaus ist Gl. (3.1) nicht definiert. Die Ejektilenergie ist um so größer je kleiner der Streuwinkel ist. Daher wird die kleinste apparative Winkelstellung von $\vartheta_1 = 30^\circ$ für die Position des Nachweisdetektors (D_1 in Fig. 2.2) verwendet.

In Richtung des Detektors werden nicht nur die gewünschten Wasserstoffkerne gestreut, sondern auch die an Titan- und Nickelkernen elastisch gestreuten Einschüßionen. Sie treffen mit einer zu hohen Rate (Wirkungsquerschnitt $\sim$ Quadrat der Kernladungszahl, massives Target) auf den Detektor und würden ihn unbrauchbar machen. Darüberhinaus treten elastische Streuprozesse an Verunreinigungen des Targetmaterials (^{12}C , ^{14}N , ^{16}O) auf. Die maximalen Energien der elastisch gestreuten Primärionen und der angestoßenen schweren Targetkerne liegen oberhalb derjenigen für Deuteronen (Gl. (3.1)), so daß die aus größeren Targettiefen stammenden schweren Ejektile niedrigerer Energie die Signale der angestoßenen Wasserstoffkerne überdecken würden. Um nur die Protonen und Deuteronen in den Detektor gelangen zu lassen, steht eine Bremsfolie vor dem Detektor, die die energieärmeren Wasserstoffkerne mit möglichst geringem Energieverlust hindurchläßt, wohingegen sie die schwereren Ionen höherer Energie vollständig bremst. Dieses Verfahren ist möglich, weil der Bremsquerschnitt für Ionen mit höheren Kernladungszahlen sehr stark zunimmt.

Die Folie muß einerseits für eine gute Tiefenauflösung der ERD-Methode (Abs. 3.1.3) möglichst dünn sein, andererseits dick genug, um alle unerwünschten Ionen zu bremsen. Diese können die gestreuten Primärionen selbst (RBS) oder angestoßene Kerne von Verunreinigungen (ERD) sein. Aus Fig. 3.1 kann man die erforderliche Dicke einer Al-Folie für verschiedene Einschüßionen mit demselben konstanten Energieübertrag

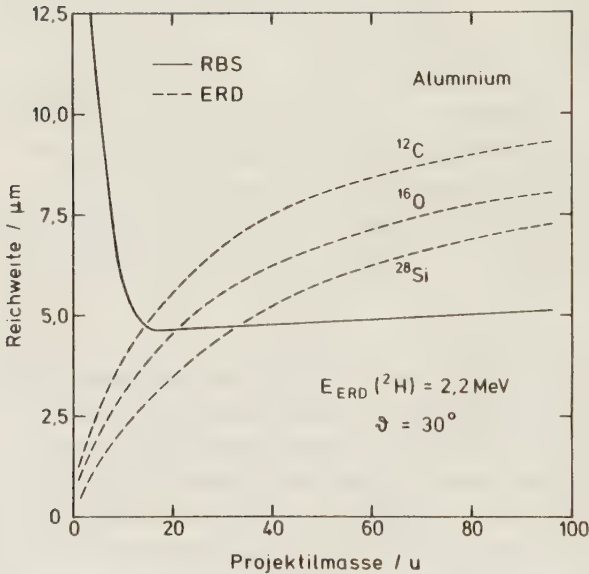


Fig. 3.1: Reichweite verschiedener Ejektile aus ERD- und RBS-Streuungen in Al als Funktion der Projektilmasse (Erläuterungen im Text)

Rutherford-Streuung ($\vartheta = 30^\circ$) an Titan ermitteln. Die Reichweiten dieser gestreuten Ionen in Al sind als durchgezogene Linie in Fig. 3.1 eingezeichnet. Als gestrichelte Linien sind die Reichweiten angestoßener schwerer Targetkerne dargestellt. Sie steigen mit der Projektilmasse an, weil der Energieübertrag auf die Targetkerne wegen der auch steigenden Projektilenergie größer wird. Die Reichweite ist um so größer je leichter der Targetkern ist. Es genügt somit, nur die Targetverunreinigung mit der geringsten Masse (hier: ^{12}C) zu berücksichtigen. Die ERD(^{12}C)-Kurve schneidet die RBS-Kurve ca. bei dem Projektil ^{14}N , so daß bei kleineren Einschußmassen das am Titan gestreute Primärteilchen die minimale Dicke der Al-Folie bestimmt und ansonsten die angestoßenen ^{12}C -Kerne. Die in Fig. 3.1 dargestellte Systematik gilt prinzipiell entsprechend für andere Target- und Folienmaterialien.

auf die Deuteronen

$E_{\text{ERD}} = 2,2 \text{ MeV}$
($\vartheta = 30^\circ$) direkt ablesen.

Aus Gl. (3.1) folgt, daß bei konstantem Energieübertrag die Einschußenergie mit der Projektilmasse steigen muß. Für die verschiedenen Projektile lassen sich mit diesen berechneten Projektilenergien die Energien nach der

Zur Auswahl des Folienmaterials ist es sinnvoll, den re-

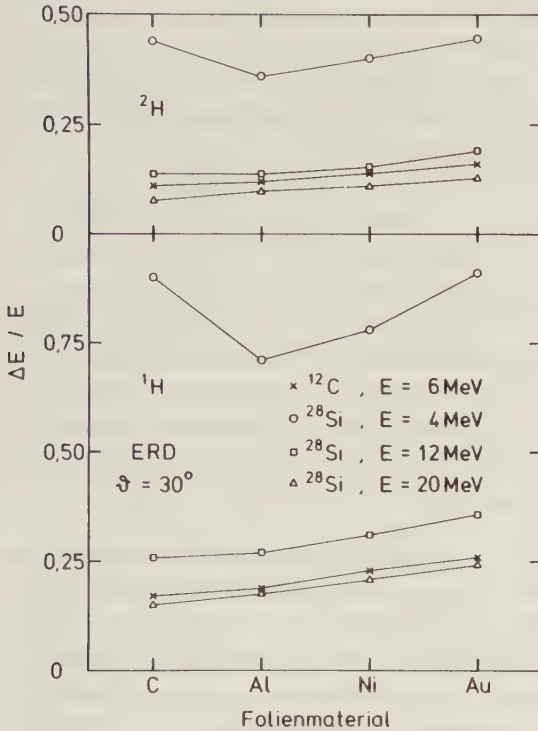


Fig. 3.2: Relativer Energieverlust $\Delta E/E$ von ^1H und ^2H aus ERD-Streuungen mit ^{12}C und ^{28}Si verschiedener Energie als Projektile in C-, Al-, Ni- und Au-Folien geringstmöglicher Dicke

lativen Energieverlust $\Delta E/E$ (ΔE : Energieverlust in der Folie, E : Energie vor der Folie) der Wasserstoffkerne in der Folie zu betrachten. Je kleiner er ist, desto kleiner ist auch die Verbreiterung der Energieverteilung der Kerne. Damit verbessert sich das Tiefenauflösungsvermögen (Abs. 3.1.3).

Fig. 3.2 zeigt den relativen Energieverlust von ^1H - und ^2H -Kernen, die ihre Energie aus ERD-Streuungen mit ^{12}C und ^{28}Si verschiedener Energie erhalten haben, für einige Folienmaterialien. Der Systematik der

Fig. 3.1 folgend haben die Folien die geringstmögliche Dicke. Der relative Energieverlust ist um so geringer je größer die Einschussenergie ist. Leichte Folienmaterialien sind günstiger als schwere, jedoch ist Aluminium bei kleiner Einschussenergie vorteilhafter als Kohlenstoff. Außerdem sind Al-Folien sehr stabil und in unterschiedlichen Stärken leicht erhältlich, so daß dem jeweiligen Experiment in der Dicke angepaßte Aluminium-Folien verwendet wurden.

3.1.2 Wirkungsquerschnitte

Um die mit der ERD-Methode gewonnenen Spektren in Dichteverteilungen umzuwandeln, wird der Wirkungsquerschnitt der Streuung benötigt. Für die elastische Streuung zweier Atomkerne kann nicht ohne weiteres die einfache Wirkungsquerschnittsformel von Rutherford verwendet werden, weil bei kleinen Relativenergien die Elektronen der Atome die Kernladung teilweise abschirmen und dadurch die Einführung einer effektiven Ladungszahl erforderlich wird /Ec79, An80/. Darüberhinaus können bei Streuprozessen mit Wasserstoffkernen resonanzartige Strukturen im Wirkungsquerschnittsverlauf auftreten /Ma77/. Da die Wirkungsquerschnittsdaten im benötigten Bereich für ^{12}C nicht vorhanden waren, wurden sie in einer eigenen Messung bestimmt.

Bei Wirkungsquerschnittsmessungen muß der Energieverlust der Projektilen im Targetmaterial vernachlässigbar klein gehalten werden, damit alle Streuungen bei derselben Einschußenergie stattfinden. Daher müssen die Targets dünne Folien sein. Protonen und Deuteronen enthaltende Folien mit bekannter Massenbelegung (z. B. Polyäthylen) scheiden allerdings aus, weil sie unter Schwerionenbeschuß sehr schnell zerstört werden. Jedoch kann man den Wirkungsquerschnitt für ERD auch bestimmen, indem man den Wirkungsquerschnitt für RBS mißt, wenn die Energien der Streupartner im Schwerpunktssystem für ERD und RBS identisch sind. Die sich hieraus ergebenden Einschußenergien und Streuwinkel sind in Tabelle 3.1 zusammengestellt.

Für die Messungen wurde eine Kohlenstoffolie der Dicke $s_{\text{C}} = 46 \text{ nm}$ ($\hat{=} 10,4 \mu\text{g cm}^{-2}$) verwendet. Die Foliendicke wurde mit Hilfe der Rutherford-Streuung von ^4He -Kernen der Energie $E = 2 \text{ MeV}$ unter einem Streuwinkel von $\vartheta = 150^\circ$ mit einer Meßunsicherheit von $\pm 3\%$ bestimmt. Aus apparativen Gründen (s. Abs. 2.2) ist es nicht möglich, Detektoren direkt unter den in Tabelle 3.1 angegebenen Streuwinkeln ψ zu positionieren. Es wurden daher drei Detektoren unter $\vartheta_1 = 90^\circ$, $\vartheta_2 = 120^\circ$ und

$^1\text{H}(^{12}\text{C},\text{p})^{12}\text{C}$	$^{12}\text{C}(\text{p},\text{p})^{12}\text{C}$	$^2\text{H}(^{12}\text{C},\text{d})^{12}\text{C}$	$^{12}\text{C}(\text{d},\text{d})^{12}\text{C}$
$E_{\text{ERD}} = 6 \text{ MeV}$	$E_{\text{RBS}} = 0,5 \text{ MeV}$	$E_{\text{ERD}} = 6 \text{ MeV}$	$E_{\text{RBS}} = 1 \text{ MeV}$
$\xi = 30^\circ$	$\psi = 115,69^\circ$	$\xi = 30^\circ$	$\psi = 111,05^\circ$

$$E_{\text{RBS}} = (m_1/m_2) \cdot E_{\text{ERD}}$$

$$\psi = \text{atan}(\sin(2 \cdot \xi) / (m_1/m_2 - \cos(2 \cdot \xi)))$$

$$m_1 < m_2$$

Tabelle 3.1: Umrechnungswerte von ERD nach RBS (Laborsystem)

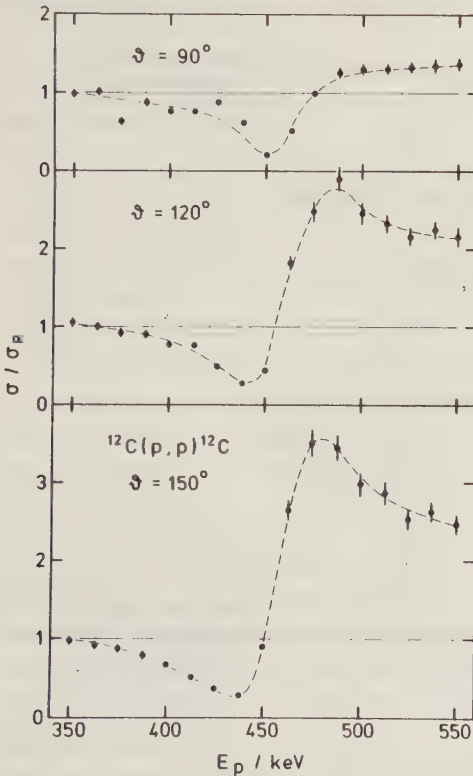


Fig 3.3: Auf Rutherford-Wirkungsquerschnitte normierte Wirkungsquerschnitte σ/σ_R in Abhängigkeit von der Projektilenergie für verschiedene Streuwinkel (----: Sichthilfe)

$\vartheta_3 = 150^\circ$ aufgestellt und die Wirkungsquerschnitte für die Streuwinkel der Tab. 3.1 interpoliert. Die auf die Rutherford-Wirkungsquerschnitte normierten Wirkungsquerschnitte σ/σ_R sind für die Streuungen $^{12}\text{C}(\text{p},\text{p})^{12}\text{C}$ in Fig. 3.3 und $^{12}\text{C}(\text{d},\text{d})^{12}\text{C}$ in Fig. 3.4 in Abhängigkeit von der Projektilenergie für die 3 obigen Streuwinkel aufgetragen. Bei der Berechnung von σ_R wurde die Abschirmung durch die Elektronen /An80/ berücksichtigt. Die resultierenden Wirkungsquerschnittsverläufe für die ERD-Streuungen $^1\text{H}(^{12}\text{C},\text{p})^{12}\text{C}$ und $^2\text{H}(^{12}\text{C},\text{d})^{12}\text{C}$ sind in gleicher Weise in

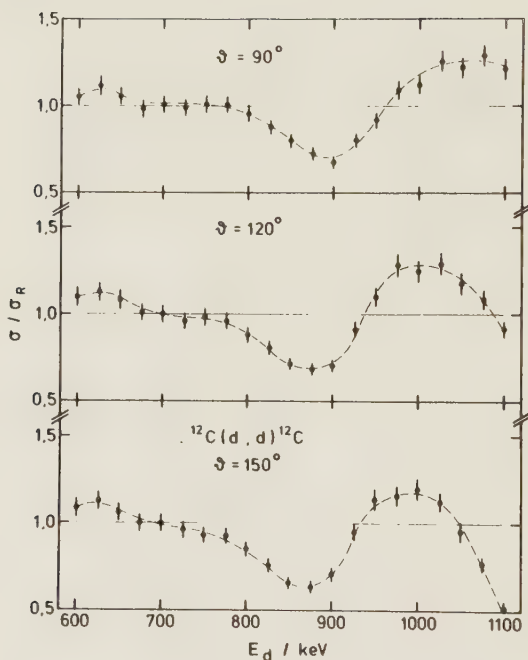


Fig. 3.4:

Auf Rutherford-Wirkungsquerschnitte normierte Wirkungsquerschnitte σ / σ_R in Abhängigkeit von der Projektilenergie für verschiedene Streuwinkel
(----: Sichthilfe)

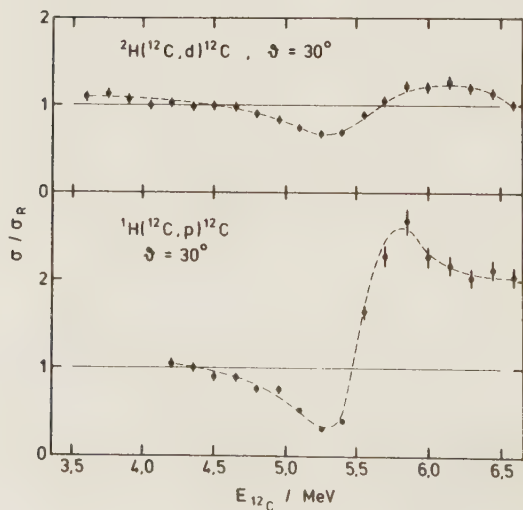


Fig. 3.5:

Auf Rutherford-Wirkungsquerschnitte normierte Wirkungsquerschnitte σ / σ_R in Abhängigkeit von der Projektilenergie
(----: Sichthilfe)

Fig. 3.5 dargestellt.

Für ^{28}Si wurden die Wirkungsquerschnittsdaten der Literatur entnommen /Ma68, La70/; sie folgen dem Rutherford-Wirkungsquerschnitt. Die Wirkungsquerschnitte für ^{16}O und ^{63}Cu wurden relativ zu denen von ^{28}Si über den ganzen Energieverlustbereich im Titan integral gemessen. Dies war möglich, weil mit diesen Ionen keine den energieabhängigen Wirkungsquerschnitt erfordernden Tiefenprofile, sondern nur die Wasserstoffbelegungen der Titanschicht gemessen werden sollten.

3.1.3 Tiefenauflösung

Für die Konvertierung der ERD-Spektren in Tiefenprofile sind neben den Wirkungsquerschnittsdaten auch Daten für die Bremsung der Teilchen im Target erforderlich. Die Bremsdaten wurden der Literatur /No70, An77/ entnommen und sind mit einem Fehler von ca. 10% behaftet. Um beurteilen zu können, wie realistisch die gewonnenen Tiefenprofile die Verteilung der Atome im Wirtsmaterial wiedergeben, muß man das Tiefenauflösungsvermögen der verwendeten Meßmethode abschätzen. Bei der Berechnung müssen mehrere Beiträge berücksichtigt werden /Mö77a, Bø78b/.

Einmal besitzt der Detektor nur ein endliches Energieauflösungsvermögen. Daneben bewirkt sein Öffnungswinkel eine kinematische Energieunsicherheit der Nachweisteilchen aus derselben Targettiefe. Vielfachstreuprozesse im Target führen zu einer Winkelaufweitung der einlaufenden Teilchen (angular straggling). Aus demselben Grund ergibt sich auch eine laterale Aufweitung des Strahls, wodurch über die unterschiedlichen Weglängen Energieschwankungen (energy straggling) der Teilchen resultieren. Das "Energiesstraggling" in der Folie vor dem Detektor liefert den Hauptbeitrag zur Verschlechterung der Tiefenauflösung, weshalb entsprechendes Augenmerk auf die Wahl der Folie gerichtet worden ist (Abs. 3.1.1).

Die gesamte Tiefenauflösung läßt sich durch die quadratische Summe der Einzelbeiträge berechnen. Allerdings können die angulare und die laterale Aufweitung durch die Vielfachstreuung auch korreliert betrachtet werden. In diesem Fall werden die beiden Einzelresultate vor der quadratischen Addition zu den übrigen Termen linear zusammengefaßt. Als Endergebnis wird der Mittelwert der korrelierten und der unkorrelierten Rechnung verwendet /Di79/. Die Rechnungen selbst wurden mit dem Computerprogramm "DRESNR" (Autor: W. Möller) durchgeführt.

Die aus ERD-Streuungen resultierenden Tiefenprofile sind mit einem mittleren Auflösungsvermögen für Deuteronen von $\delta_D \approx 24$ nm und für Protonen von $\delta_P \approx 37$ nm behaftet. Diese Werte ändern sich nur langsam mit Projektilsorte und -energie. Bei diesen Rechnungen wurde die Targetstellung als symmetrisch zwischen Ionenstrahl- und Detektorrichtung angenommen, woraus eine Winkelstellung der Oberflächennormalen von $\varphi = 105^\circ$ resultiert. Zu spitze Winkel zwischen Targetoberfläche und Detektorrichtung bzw. Strahlachse bergen die Gefahr großer Justierfehler in sich, und darüberhinaus können Oberflächenrauigkeiten des Targets das Auflösungsvermögen auch wieder verschlechtern.

Die obigen Werte der Tiefenauflösung zeigen, daß wegen der geringen Dicke der gesamten Titanschicht von ca. 90 nm nur Tendenzen der Profilveränderung erkannt werden können.

3.2 Targetdefinition

3.2.1 Deuteriumbeladung

Um das Ti-Target mit Deuterium zu beladen, stehen mehrere Wege offen. Erstens ist es durch geeignete Targettemperaturwahl und Aufbau einer Deuteriumatmosphäre über dem Target möglich, eine bestimmte Deuteriumkonzentration in dem Titan aufzubauen. Das Wasserstoff-Titan-Phasendiagramm

(Fig. 3.6) gibt die entsprechenden Daten an. Es gilt im Gleichgewicht zwischen ein- und austretenden Wasserstoffatomen. Aus apparativen Gründen wird von dieser Möglichkeit hier kein Gebrauch gemacht.

Zweitens kann man das Deuterium direkt in das Titan mit einem Teilchenbeschleuniger implantieren. Bei den hier verwendeten speziellen Targets mit der sehr dünnen Titanschicht

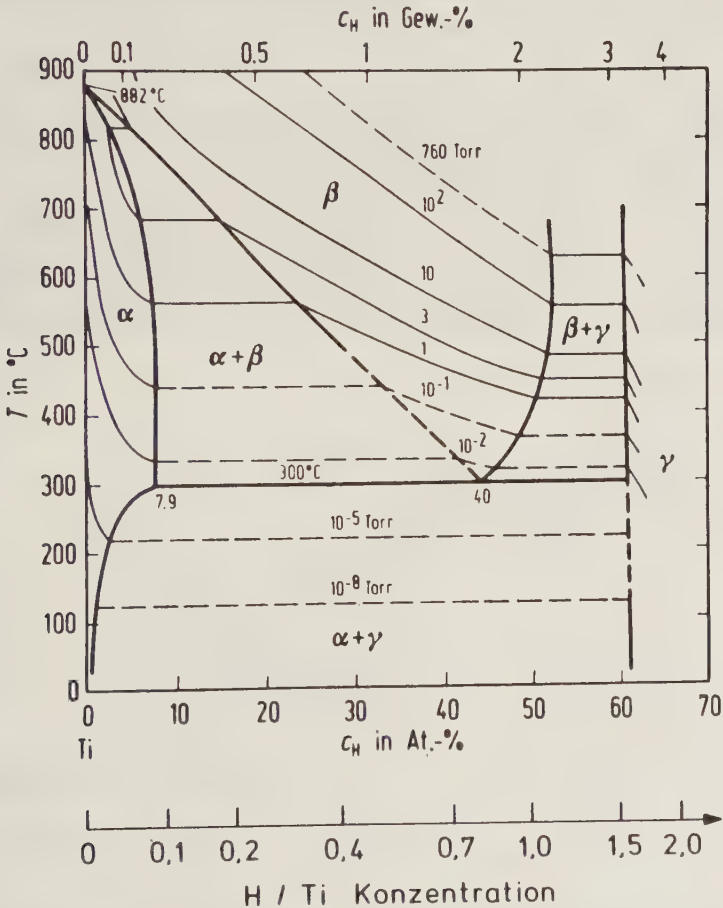


Fig. 3.6: Wasserstoff-Titan-Phasendiagramm /Fr76/

($s_{Ti} \approx 90$ nm) genügen Deuteronenenergien von einigen keV, um je nach Targetgeometrie die Deuteronen mitten in die Titanschicht zu implantieren. Für diese Technik steht die 40 kV-Ionenquelle zur Verfügung. Nachteilig dabei ist, daß im Gebiet der Reichweiteverteilung der Deuteronen das Wirtsgitter stark geschädigt wird, wegen der Dominanz der nuklearen Bremsung bei den niedrigen Energien am Ende der Reichweite. Diese Beladungsmethode wurde daher nur einmal angewendet, um ihren Einfluß auf die Ergebnisse der Desorptionsmessungen mit demjenigen der im folgenden dargestellten Beladungstechnik vergleichen zu können.

Ziel dieses dritten Beladungsverfahrens ist es, die Deuteronen in das Titan einzubringen, ohne dort Strahlenschäden zu verursachen. Die Deuteronen werden auf die Energie von $E = 400$ keV beschleunigt und haben damit eine viel größere Reichweite als die Dicke der Titanschicht beträgt. Die Oberflächennormale des Targets zeigt auf $\varphi = 120^\circ$. Erst im Nickel hinter dem Titan kommen die Deuteronen in einer projizierten

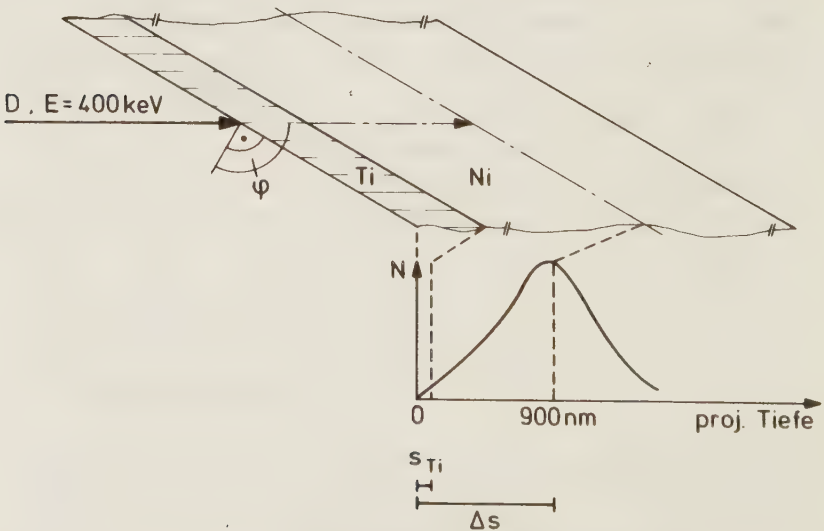


Fig. 3.7: Schematische Darstellung der Implantationsgeometrie des Ti/Ni-Targets und der Reichweiteverteilung der Deuteronen der Energie $E = 400$ keV

Tiefe von ca. $\Delta s = 900$ nm mit einer ungefähr gaußförmigen Reichweiteverteilung /Mö77b/ zur Ruhe, wie in Fig. 3.7 illustriert ist. Der Bereich der Gitterschäden liegt bis auf einen sehr kleinen Anteil am Ende der Reichweite und nicht im Titan. Da die Wegstrecke von der Implantationstiefe zur Titanschicht mit ca. 800 nm klein gegen die laterale Strahlfleckausdehnung von 1,5 mm ist, kann man die Diffusion der Deuteronen als eindimensional parallel zur Oberflächennormalen auffassen. Für die Diffusion zur Ti-Schicht (Diffusionskoeffizient in Tab. 3.2) benötigen die Deuteronen bei Temperaturen $T > 300$ K eine Zeit $\Delta t < 10$ s, die klein gegen die Implantationsdauer ist. Die Diffusion ist im Energieschema der Fig. 3.8 durch die Pfeile zwischen den Potentialsenken angedeutet. Die an die Grenzschicht Nickel-Titan gelangenden Deuteronen können die dortige Energieschwelle E_s thermisch überwinden und gehen in die Titanschicht über. Da das Energieniveau des Titans tiefer liegt, ist ein Rücksprung extrem unwahrscheinlich, so daß das Titan als Deuteronensenke ver-

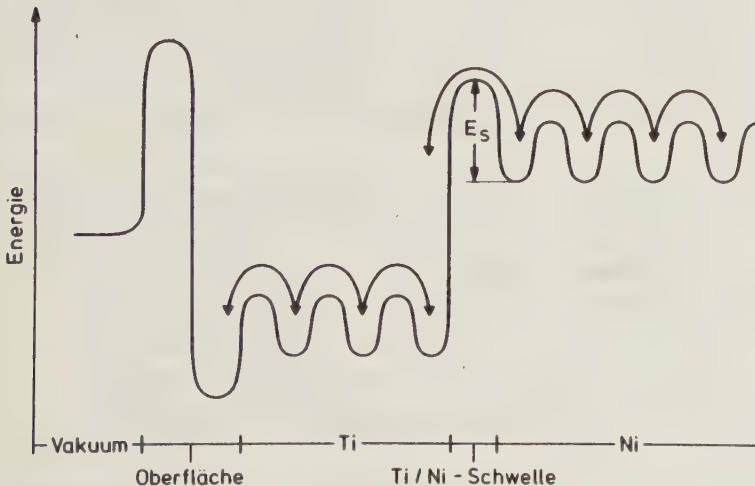


Fig. 3.8: Schematisches Energiediagramm für die Deuteronenbeladung des Ti/Ni-Targets

standen werden kann. Der Zustrom der Deuteronen aus dem Nickel führt damit im Titan zu einer Konzentrationserhöhung, da auch die Desorption aus der Titanoberfläche heraus wegen der dortigen Energieschwelle sehr unwahrscheinlich ist.

Fig. 3.9 zeigt das Ergebnis eines solchen Beladungsexperiments. In Teil (a) ist die Deuteronenbelegung n_D in der Titanschicht in Abhängigkeit von der aufgetragenen Deuteronendosis d bei der Stromdichte $j = 1,4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ und der Targettemperatur $T = 423 \text{ K}$ aufgetragen. Der Nachweis geschieht über die Kernreaktion ${}^2\text{H}(d,p){}^3\text{H}$, die die Deuteronen des Implantationsstrahls mit den schon im Titan vorhandenen einge-

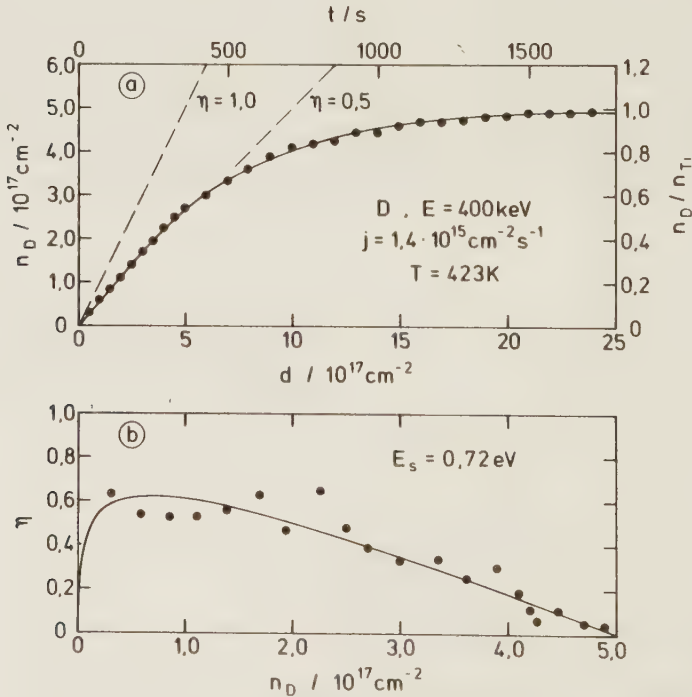


Fig. 3.9: Teil (a): Deuteronenbelegung n_D in der Titanschicht in Abhängigkeit von der Implantationsdosis d
Teil (b): Beladungswahrscheinlichkeit η als Funktion der Deuteronenbelegung n_D in der Titanschicht
(—: theoretische Anpassung)

hen. Zunächst steigt die Belegung mit der Dosis linear an, knickt dann ab und geht in einen Sättigungswert über, der bei $n_D \approx 5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ ($\hat{=} n_D/n_{Ti} = 1 \text{ D/Ti}$) liegt. Die Steigung des linearen Anstiegs am Anfang ergibt eine Wahrscheinlichkeit von $\eta \approx 50\%$, daß ein implantiertes Deuteron in die Titanschicht gelangt und dort verbleibt. Die Beladungswahrscheinlichkeit η ist in Abhängigkeit von der Deuteronenbelegung n_D in Fig. 3.9b dargestellt.

Das Phasendiagramm (Fig. 3.6) zeigt, daß bei der Temperatur $T = 423 \text{ K}$ und der Konzentration von 1 D/Ti (die Deuteronenkonzentration c_D wird im folgenden auch durch das Konzentrationsverhältnis c_D/c_{Ti} ausgedrückt, wobei die Teilchendichte des Titans hier $c_{Ti} = 4,6 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ (s. Abs. 3.2.2) ist) der Wasserstoff im Titan in der ($\alpha + \gamma$)-Phase vorliegt. Damit eine vollständige Beladung der Titanschicht erfolgen kann, muß der Wasserstoff im Titan schnell diffundieren können, so daß an der Grenze zum Nickel keine blockierende hohe Sättigungskonzentration aufgebaut wird. Die Diffusionskoeffizienten D lassen sich nach folgender Formel berechnen:

$$D = D_0 \cdot \exp(-E_d / kT) \quad (3.2)$$

In Tab. 3.2 sind die entsprechenden Daten zusammengestellt.

Material	$D_0 / \text{cm}^2 \text{ s}^{-1}$	E_d / eV	Ref.
Ni	$4,76 \cdot 10^{-3}$	0,41	/Vö75/
α -Ti	$9,9 \cdot 10^{-3}$	0,54	/Ku83/
γ -Ti	$1,8 \cdot 10^{-4}$	0,39	/Br83/

Tabelle 3.2: Diffusionskoeffizienten

Für eine Abschätzung des Diffusionsweges Δx in der Zeit Δt reicht die Formel /Jo72/

$$\Delta x = \sqrt{D \cdot \Delta t} \quad (3.3),$$

und man erhält Werte, die in Tabelle 3.3 für α -Titan zusammengestellt worden sind.

T / K	140	300	500
Δt / s	100	100	100
Δx / μm	$2 \cdot 10^{-6}$	0,3	19

Tabelle 3.3: Diffusionswege Δx in Abhängigkeit von der Temperatur T und der Zeit Δt in α -Titan

Für Temperaturen $T \geq 300$ K sind die Diffusionswege Δx groß gegen die Dicke der Titanschicht ($s_{\text{Ti}} \approx 0,1 \mu\text{m}$) in der Zeit Δt , die klein gegen die Beladungszeit t (s. Fig. 3.9a) ist. Die Diffusion innerhalb der γ -Phase ist im Temperaturbereich $300 \text{ K} \leq T \leq 500 \text{ K}$ ähnlich zu der in der α -Phase. Daraus folgt, daß sich sowohl die α -Phase als auch die γ -Phase während der Beladung gleichmäßig über die ganze Tiefe der Titanschicht verteilen kann. Dagegen verursachen selbst lange Standzeiten ($\Delta t \approx 10^5$ s) des Targets von der Beladung bis zur Messung des Wasserstofffreisetzens bei Raumtemperatur keine meßbare Vergrößerung des Implantationsflecks ($\Delta x \approx 9 \mu\text{m} \ll 1,5 \text{ mm}$), so daß die Wasserstoffkonzentration erhalten bleibt.

Die durchgezogenen Linien in Fig. 3.9 repräsentieren Simulationsrechnungen mit dem Computerprogramm "PIDAT" (Autoren: W. Möller und Th. Pfeiffer), die das Experiment sehr gut wiedergeben. Wegen der hohen Beladungstemperatur von $T = 423 \text{ K}$ kann die Bewegung der Deuteronen im Nickel rein diffusiv mit einer Energieschwelle E_s zwischen Nickel und Titan (s. Fig. 3.8) gerechnet werden. Die Diffusionsgleichung lautet

$$\frac{\partial c_d(x,t)}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 c_d(x,t)}{\partial x^2} \quad (3.4)$$

mit $c_d(x,t)$: Anzahl der diffusiven Deuteronen pro Volumeneinheit bei der Ortskoordinate x zur Zeit t und D : Diffusionskoeffizient. Die Bedingung für die Deuteronenstromdichte x in

das Titan ergibt sich zu

$$\chi(t) = f_0 \cdot \exp(-E_s / kT) \cdot \int_0^{x_1} c_d(x,t) \cdot dx \quad (3.5).$$

x_1 ist das erste Tiefenintervall im Nickel hinter dem Titan, $f_0 \approx 10^{13} \text{ s}^{-1}$ die Debye-Frequenz und E_s die Schwellenenergie. Das Sättigungsverhalten der Titanschicht wird durch die Vorgabe einer maximalen Haftstellenkonzentration h berücksichtigt.

$$\frac{\partial n_D(t)}{\partial t} = \chi(t) \cdot \left(1 - \frac{n_D(t)}{h \cdot s_{Ti}}\right) \quad (3.6)$$

mit n_D : Deuteronenbelegung der Titanschicht und s_{Ti} : Dicke der Titanschicht.

In den Rechnungen wird ein Quellterm in Form einer Gaußkurve für die Deuteronen verwendet (s. Fig. 3.7). Die Haftstellenbelegung wird zu $h \cdot s_{Ti} = 5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ vorgegeben und die Schwellenenergie E_s angepaßt. Es resultiert ein Wert von $E_s = 0,72 \text{ eV}$. Die wahrscheinlichste physikalische Ursache für eine solche Schwelle sind Verunreinigungen (C, O) in der Grenzschicht, z. B. Lösungsmittelreste des Poliervorganges auf dem Nickel. Abhängig von der Menge solcher Verunreinigungen ändert sich die Höhe der Schwelle. Daher sind auch von Probe zu Probe schwankende Wahrscheinlichkeitswerte $\eta \approx 0,5$ nicht unverständlich. Sie hängen außerdem von der Implantationsstromdichte j und der Targettemperatur T ab.

Hinweise auf die physikalischen Ursachen der Sättigungskonzentration von ca. 1 D/Ti kann eine Analyse des Targets in bezug auf Verunreinigungen geben. Im folgenden Abschnitt werden die dazu durchgeführten Untersuchungen dargestellt.

3.2.2 Targetverunreinigungen

Titan ist ein sehr reaktives Metall und geht mit fast allen Elementen chemische Bindungen ein. Die Titanschicht

wird in einer Aufdampfanlage mit einem Restgasdruck von wenigen 10^{-6} hPa auf das Nickel aufgebracht. Die Atmosphäre setzt sich hauptsächlich aus H_2O , N_2 , O_2 , CO_2 und Kohlenwasserstoffen aus dem Öl der dort eingesetzten Öldiffusionspumpe zusammen. Somit können diese Gase schon während der Aufdampfzeit von ca. 200 s das Target verunreinigen. Beispielsweise treffen bei einem Partialdruck $p_{H_2O} \approx 10^{-6}$ hPa ca. $7 \cdot 10^{16}$ H_2O -Moleküle cm^{-2} (verglichen mit ca. $5 \cdot 10^{17}$ Ti-Atome cm^{-2}) während des Aufdampfvorgangs auf das Target. Darüberhinaus läßt es sich nicht vermeiden, daß das Target zwischen Präparationsende und UHV-Kammereinbau mit Luft in Berührung kommt, so daß ebenfalls eine Anlagerung von Gasen stattfinden kann.

Um festzustellen, wie groß der Anteil der einzelnen Elemente in den mit Deuteronen beladenen Targets ist, wurden sie mit Hilfe eines Deuteronenstrahls der Energie $E = 2$ MeV analysiert bevor das Experiment der Ionenstrahlinduzierten Wasserstoffdesorption gestartet wurde. In Tab. 3.4 sind die auswertbaren Kernreaktionen mit den benötigten Daten zusammengestellt. Aufgrund der geringen Bremsung der Deuteronen in der dünnen Titanschicht /An77/ kann die Projektilenergie als konstant über die ganze Tiefe angesehen werden.

Reaktion	Q-Wert / MeV	Ref.	σ_{30° / mb	Ref.
${}^2H(d, t_0) {}^1H$	4,033	/F173/	14,2	/Ja57/
${}^2H(d, p_0) {}^3H$	4,033	/F173/	14,0	/Ja57/
${}^{12}C(d, p_0) {}^{13}C$	2,722	/Aj81/	23,9	/A170/
${}^{14}N(d, p_5) {}^{15}N^*$	1,308	/Aj81/	32,8	/Be67/
${}^{16}O(d, p_0) {}^{17}O$	1,920	/Aj82/	9,1	/Di68/
${}^{16}O(d, p_1) {}^{17}O^*$	1,049	/Aj82/	42	/Di68/

Tabelle 3.4: Kernreaktionsdaten

Fig. 3.10 zeigt ein typisches Spektrum für den Streuwinkel $\vartheta = 30^\circ$. Die in das Niederenergiebereich reichende Linie der ${}^2H(d, t) {}^1H$ Reaktion wird nicht ausgewertet. Es ergeben

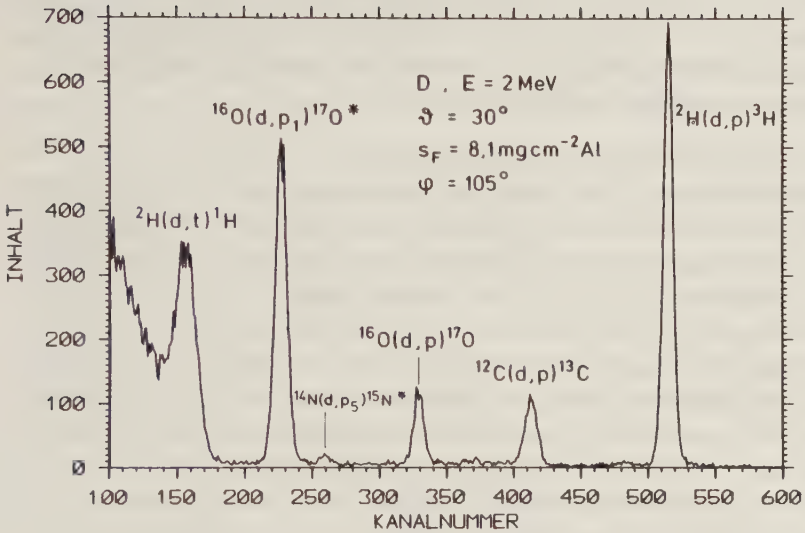


Fig. 3.10: Kernreaktionsspektrum bei Bestrahlung des Ti/Ni-Targets mit Deuteronen

sich die in Tab. 3.5 zusammengestellten typischen Werte für die Teilchenbelegungen.

Element	Teilchenbelegung	Konzentration
	10^{17} cm^{-2}	Teilchen pro Titanatom
^2H	5	1
^{12}C	0,3 - 0,5	0,07 - 0,1
^{14}N	0,1 - 0,2	0,02 - 0,04
^{16}O	1,25 - 2,0	0,25 - 0,4

Tabelle 3.5.: Durchschnittliche Fremdatombelegungen des Ti/Ni-Targets

Die Schwankungen ergeben sich zwischen unterschiedlichen Targets wegen undefinierter Aufnahme von Verunreinigungsgasen von der Präparation bis zum Kammereinbau. Die Deuteronenbelegung ist durch die Implantation (Abs. 3.2.1) vorgegeben. Zu-

sätzlich sind in Tab. 3.5 mittlere Konzentrationswerte angegeben, mit der Voraussetzung, daß sich die Atome homogen in der Ti-Schicht verteilt befinden. Die Gültigkeit dieses Ansatzes wird im folgenden untersucht.

Die schlechte Tiefenauflösung ($\delta \approx 100$ nm) der Kernreaktionen der Tab. 3.4 läßt eine nähere Bestimmung des Ortes der Verunreinigungen im Target nicht zu. Dazu kann man jedoch die Rutherford-Analyse mit ^4He -Ionen der Energie $E = 2$ MeV unter dem Streuwinkel $\vartheta = 150^\circ$ an der gleichzeitig zu den Nickelscheiben mit Titan bedampften Kohlenstoffolie (Abs. 2.4) verwenden. Fig. 3.11 zeigt ein Spektrum, das unter der ebenfalls im Bild dargestellten geometrischen Anordnung entstanden ist, bei der die Folie mit der Kohlenstoffseite dem ^4He -Strahl zugewandt unter einem Winkel der Oberflächennormalen von $\varphi = 155^\circ$ in der Kammermitte aufgestellt war. Um auch schwächere Linienintensitäten hervorzuheben, ist eine logarithmische Skala gewählt worden. Die auftretenden Linien sind Ti, O, C und Na

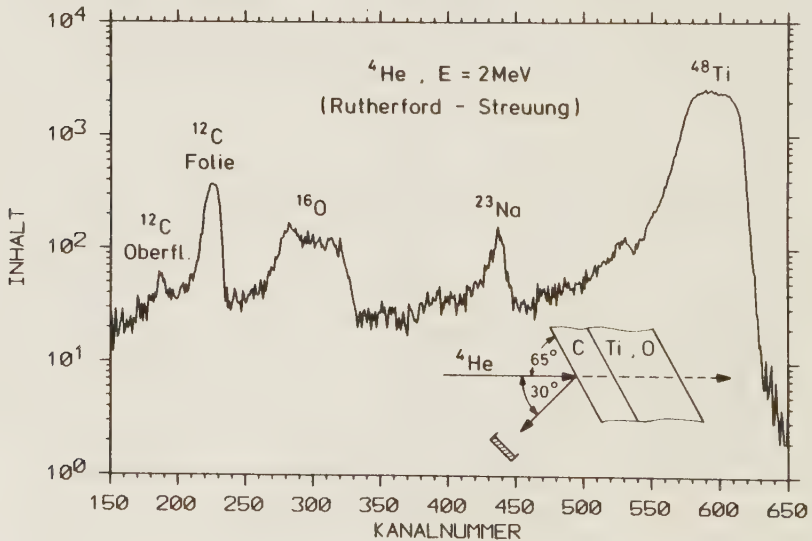


Fig. 3.11: Spektrum der ^4He -Rutherford-Rückstreuung an einer mit Titan bedampften C-Folie unter der ebenfalls im Bild dargestellten geometrischen Anordnung

zuzuordnen. Na haftet der Kohlenstoffolie an, weil bei der Folienherstellung ein Na-haltiges Trennmittel verwendet wird. Eine Stickstofflinie ist nicht zu sehen, weil sie durch das sehr viel stärkere Signal der C-Trägerfolie überlagert wird.

Für die Analyse der Aufenthaltsorte von C, O und Ti ist das Spektrum durch Anwendung mathematischer Verfahren, die an anderer Stelle schon ausführlich dargestellt worden sind /Hu75, Mö75/, mit dem Computerprogramm "AUDIVE" (Autor: M. Hufschmidt) in ein Tiefenprofil konvertiert worden (Fig. 3.12). Dort ist die Konzentration der jeweiligen Elemente in Abhängigkeit von dem Ort in der Folie aufgetragen. Da die Kohlenstoffolie dem Strahl zugewandt ist, findet man Kohlenstoff in der Tiefe 0 nm bis ca. 40 nm. Dahinter liegt die Tischiicht mit einer Breite von ca. 135 nm (FWHM). Die Überlappungen der Linien sind durch das Auflösungsvermögen von ca. 30 nm bedingt. Die Teilchendichte des Titans ergibt sich zu ca. $c_{Ti} = 4,6 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$, was etwa 20% unter dem Wert rei-

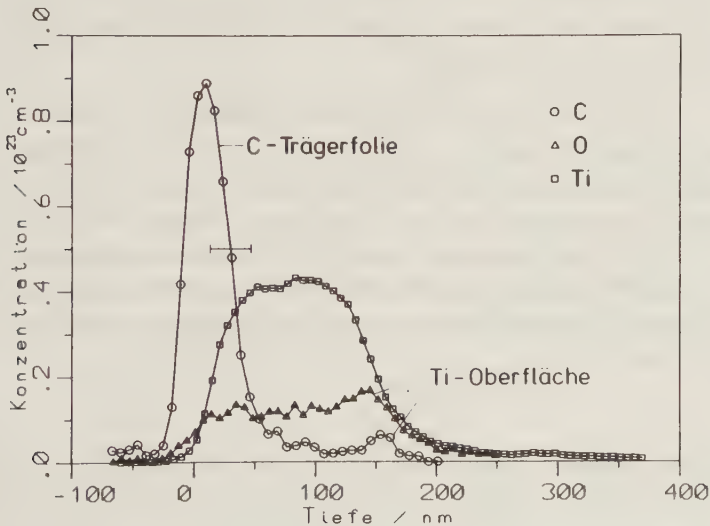


Fig. 3.12: Tiefenprofile der mit Titan bedampften C-Folie für C, O und Ti

nen Titans liegt. Dies könnte durch eine Gitteraufweitung durch Sauerstoff erklärt werden, der homogen im Titan mit einer Konzentration von ca. $1,3 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3} \triangleq 0,3 \text{ O/Ti}$ vorliegt, zumal $c_{\text{Ti}}(\text{TiH}_2)$ auch den gleichen obigen Wert hat /Si56/.

Darüberhinaus zeigt sich an der Oberfläche des Titans eine Erhöhung der Sauerstoffkonzentration. Aus der Umgebungsatmosphäre stammender Sauerstoff ist dort chemisorbiert. Die chemisorbierte Sauerstoffbedeckung auf Folien verschiedener Meßreihen ist recht konstant; dies wird auch als für das massive Target geltend angenommen. Auch Kohlenstoff, der innerhalb der Titanschicht nicht vorkommt, ist auf der Oberfläche in einer geringen Bedeckung chemisorbiert. Die Breiten dieser Chemisorbatschichten in Fig. 3.12 sind nur durch das Auflösungsvermögen bestimmt. Die Integration der Linien liefert die Oberflächenbedeckungen zu $\nu_{\text{O}} \approx 2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und $\nu_{\text{C}} \approx 6 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$; dies entspricht ca. 13 bzw. 4 Monolagen. Die um einen Faktor 5 - 8 höheren Werte der Kohlenstoffbelegung des massiven Ti/Ni-Targets (Tab. 3.5) können damit den Resten von Diamantpolierpaste im Nickel zugeordnet werden, zumal Messungen an unbedampften Ni-Targets Kohlenstoff in gleicher Menge ausweisen.

Am massiven Ti/Ni-Target wird die gleiche Fremdatomanalyse mit Deuteronen der Energie $E = 2 \text{ MeV}$ nach Abschluß eines Desorptionsexperiments mit Schwerionenbeschuß nochmals durchgeführt. Es ergeben sich die gleichen Meßwerte für C, N und O wie vor dem Freisetzexperiment. (Die Deuteronenkonzentration hat natürlich stark abgenommen.) Daraus resultiert, daß die Verunreinigungen im Target durch den Schwerionenbeschuß nicht beeinflußt werden.

3.2.3 Thermische Desorption

Wie schon früher erwähnt, ist die Temperatur ein wichtiger Parameter für die Desorption von Wasserstoff aus Metallen. Das Aufheizen eines mit Wasserstoff beladenen Metalls auf ge-

nügend hohe Temperaturen bewirkt eine vollständige Entgasung. Aus dem Desorptionsverhalten des Wasserstoffs läßt sich der ratenkontrollierende Prozeß der Desorption bestimmen. Dieser Prozeß kann die Diffusion im Metall, das Einfangen und Freisetzen an und aus Haftstellen im Metall oder auch die Desorption von der Metalloberfläche sein.

Zu diesem Zweck wird das Ti/Ni-Target einem Ausheizprogramm unterzogen. Dabei wird das Target mit einer konstanten Aufheizgeschwindigkeit α bis auf eine Temperatur von ca. $T = 650 \text{ K}$ erwärmt und währenddessen der D_2 -Partialdruck der Kammeratmosphäre kontinuierlich registriert. Fig. 3.13 zeigt ein typisches Beispiel der Entwicklung des D_2 -Druckes in Abhängigkeit von der Targettemperatur T . Der gemessene D_2 -Druck

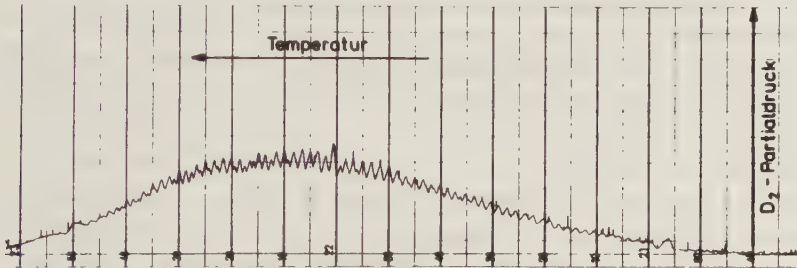


Fig. 3.13: D_2 -Partialdruck in der Meßkammer als Funktion der Targettemperatur (Original des Schreiberdiagramms)

ist proportional zum Desorptionsstrom der Deuteronen aus dem Titan. Die Integration dieser Meßwerte über die Temperatur und Normierung auf das Gesamtintegral gemäß der Gleichung

$$V = \left(\int_0^{T_p} p_{D_2}(T) \cdot dT \right) / \left(\int_0^{\infty} p_{D_2}(T) \cdot dT \right) \quad (3.7)$$

liefert das Verhältnis V der momentanen Wasserstoffkonzentration im Titan bei der Temperatur T_p zur Ausgangskonzentration. Fig. 3.14 zeigt eine mittels Gl. (3.7) aus der Druckmessung gewonnene Ausheizkurve. Aufgetragen ist dort die Deuteronenkonzentration im Titan in Abhängigkeit von der Targettempera-

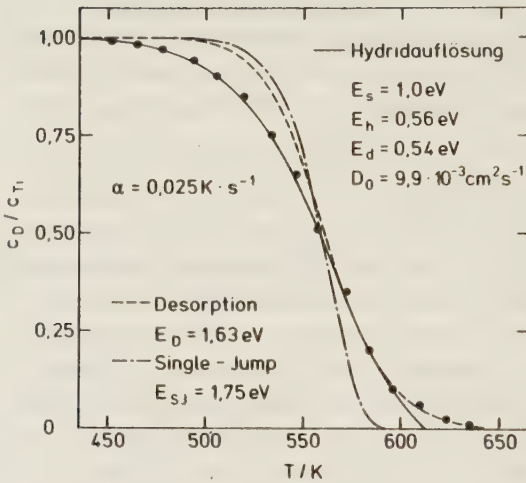


Fig. 3.14: Ausheizkurve von Deuterium in Titan; Linien sind theoretische Anpassungen verschiedener Modelle

tur für die Ausgangskonzentration von 1 D/Ti und die Aufheizgeschwindigkeit $\alpha = 0,025 \text{ Ks}^{-1}$. Es ergibt sich ein bis ca. 500 K konstanter Konzentrationsverlauf. Anschließend erfolgt ein rasches Ausgasen des Deuteriums, wobei über die Hälfte der Konzentration bei ca. 560 K erreicht ist. Oberhalb von 650 K ist die Konzentration fast bis auf Null gesunken.

Der Versuch der theoretischen Simulation dieses Kurvenverlaufs ergibt, daß die Diffusion, die Bindung an Haftstellen im Titan oder eine Oberflächenschwelle, jeweils für sich betrachtet, nicht allein der ratenkontrollierende Prozeß der Desorption sein kann. Die Energie E_{SJ} für das Freisetzen aus Haftstellen (Single-Jump-Modell) ist der Halbwertstempertur $T_{0,5} = 560 \text{ K}$ angepaßt und der resultierende Kurvenverlauf in Fig. 3.14 eingezeichnet worden. Dasselbe gilt für die Oberflächenschwellenenergie E_D des Desorptionsmodells (Modellbeschreibungen s. /Pf80, Mö83/). Das Single-Jump-Modell kann die Meßwerte nicht wiedergeben, wohingegen das Desorptionsmodell bei niedrigen Konzentrationen sehr gut mit der Messung übereinstimmt, aber die Konzentrationsabnahme beginnt erst bei zu hohen Temperaturen. Daher wurde ein Zusammenspiel der verschiedenen Prozesse mit dem schon in Abs. 3.2.1 erwähnten Computerprogramm "PIDAT" simuliert. Die diesem Programmteil zugrunde liegende mathematische Beschreibung ist an anderer Stelle schon ausführlich dargestellt worden

/Mc63, My79, Mö83/ und wird hier nur kurz skizziert.

Die Diffusionsgleichung (3.4) erhält einen Zusatzterm, der das Freisetzen und Wiedereinfangen des Wasserstoffs an Haftstellen im Titan beschreibt. Das Freisetzen wird durch eine Sprungfrequenz mit Boltzmann-Term bestimmt, und der Wiedereinfang hängt von der Diffusionsgeschwindigkeit und der Wahrscheinlichkeit einer leeren Haftstelle ab. Die mathematische Formulierung stellt sich wie folgt dar.

$$\frac{\partial c_d(x,t)}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 c_d(x,t)}{\partial x^2} - S(x,t) \quad (3.8)$$

$$S(x,t) = 4 \cdot \pi \cdot \lambda \cdot D \cdot (c_d(x,t) \cdot (h(x,t) - c_h(x,t)) - c_h(x,t) \cdot N \cdot \mu \cdot \exp(-E_h / kT))$$

mit c_h : Anzahl der eingefangenen Deuteronen pro Volumeneinheit, h : Anzahl der Haftstellen pro Volumeneinheit, λ : Einfangradius einer Haftstelle, μ : Anzahl der von der Haftstelle wegführenden möglichen Sprünge, E_h : Energiedifferenz zwischen Haftstellen- und Diffusionspotential und N : Teilchenzahl des Wirtsmetalls pro Volumeneinheit. Die Stromdichte $\bar{z}$ der durch die Oberfläche tretenden Deuteronen ergibt sich zu /Ba80a/:

$$\bar{z}(t) = \frac{K_O}{\sqrt{t}} \cdot \exp(-E_s / kT) \cdot c_d^2(x_1, t) \quad (3.9)$$

mit K_O : Materialkonstante und $E_s = -2 \cdot E_a$ mit E_a : Löslichkeitsenthalpie eines exotherm lösenden Metalls.

Der Rechnungsansatz enthält die Voraussetzungen, daß die Deuteronen vor dem Aufheizvorgang alle an Haftstellen gebunden sind und daß freigesetzte Deuteronen dem Diffusionskoeffizienten gemäß diffundieren und wieder an Haftstellen eingefangen werden können. Die Haftstellen verteilen sich homogen über die ganze Dicke der Titanschicht mit einer maximalen Konzentration, die gleich dem Maximalwert der Deuteriumbeladung (Abs. 3.2.1) ist. Wasserstoff bildet im Titan keine Einzelhaftstellen, sondern größere Hydridinseln (= Präzipitate)

/Po80/. Oberhalb von $T = 500$ K lösen sich diese Präzipitate auf /Ro80a/, wodurch ihre Volumina geringer werden. Diffundierende Teilchen treffen dann weniger häufig auf die Präzipitate, und die Einfangswahrscheinlichkeit nimmt ab. Dies wird in der Simulation näherungsweise dadurch berücksichtigt, daß die Haftstellenverteilung h entsprechend der verbleibenden Deuteronenkonzentration reduziert wird.

Alle benötigten Parameter wurden der Literatur entnommen. Der Einfangradius λ sei gleich der Gitterkonstanten des TiD_2 (0,44 nm) und damit $N = 4,6 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ /Si56/. Die Koordinationszahl für kfz-Gitter ist $\mu = 8$, der Diffusionskoeffizient $D = 9,9 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1} \cdot \exp(-0,54 \text{ eV} / kT)$ (Abs. 3.2.1) und die Potentialtiefe der Haftstellen $E_d + E_h = 1,1 \text{ eV}$ (1,2 eV in /St83/). Weiterhin wurde $K_O = 2,7 \cdot 10^{15} \text{ cm}^4 \text{ s}^{-1} \sqrt{K}$ und $E_s = 1 \text{ eV}$ /Ba80a/ gesetzt. In Fig. 3.14 ist die resultierende theoretische Kurve als durchgezogene Linie eingezeichnet. Die Meßwerte werden sehr gut wiedergegeben. Lediglich bei Konzentrationen unter 10% D/Ti ist die theoretische Entgasung zu schnell. Dies dürfte auf die nur pauschale Berücksichtigung der Hydridauflösung zurückzuführen sein.

Mit den in den letzten Abschnitten dargestellten Untersuchungsergebnissen bezüglich Targetverunreinigungen, Deuteriumbeladung und thermischer Desorption kann im folgenden Abschnitt eine zusammenfassende Charakterisierung des Targets erfolgen.

3.2.4 Targetcharakterisierung

Die hier erreichten typischen Sättigungskonzentrationen der Deuteronen im Titan liegen bei ca. 1 D/Ti. Dagegen läßt das Phasendiagramm (Fig. 3.6) einen Maximalwert von 2 D/Ti (TiD_2) zu. Dieser Unterschied ist vermutlich auf die Sauerstoffanteile im Titan zurückzuführen, die das Titan homogen mit einer Konzentration von ca. 0,3 O/Ti durchsetzen. Da der Sauerstoff bei Raumtemperatur im Titan fast unbeweglich ist

/An83/, muß er schon beim Aufdampfprozeß des Titans mit eingebaut worden sein. Die Abschätzung der Zahl der während des Ti-Aufdampfens aus der Restgasatmosphäre auf das Target treffenden Gasmoleküle läßt dies ohne weiteres zu (Abs. 3.2.2). Nach Beendigung des Aufdampfens steht für die Bildung einer Sauerstoffchemisorbatschicht genügend Zeit zur Verfügung.

Sauerstoff kann die Wasserstoffaufnahme reduzieren, sofern er Konzentrationen von mehreren Prozent O/Ti erreicht. Goretzki /Go67/ fand, daß sich der Sauerstoff auf den Oktaederplätzen des Titangitters befindet. Hinzukommender Wasserstoff verändert diese Positionen nicht; er selber besetzt die Tetraederplätze. Allerdings werden die dem Sauerstoff am nächsten liegenden Plätze gemieden, wodurch die Verminderung der maximal erreichbaren Wasserstoffkonzentration erklärt werden kann.

Darüberhinaus stellt sich die Frage nach einem Einfluß des Sauerstoffs auf das Verhalten des Wasserstoffs in Abhängigkeit von der Temperatur und unter Ionenbeschuß. Die Targetanalyse nach einer Freisetzmessung ergab immer, daß die Sauerstoffkonzentration unverändert geblieben war. Damit wäre ein eventueller Sauerstoffeinfluß während der Bestrahlung zumindest konstant. Weiterhin ergab sich, daß die thermische Desorption bis hinunter zu niedrigen Konzentrationen durch ein theoretisches Modell, das nur Literaturdaten für Titan enthält, sehr gut beschrieben werden kann. Der Sauerstoff im Titan scheint demnach keinen meßbaren Einfluß auf die Wasserstoffdesorption hier zu haben, so daß die im folgenden dargestellten Resultate als für Titan allgemein gültig betrachtet werden können.

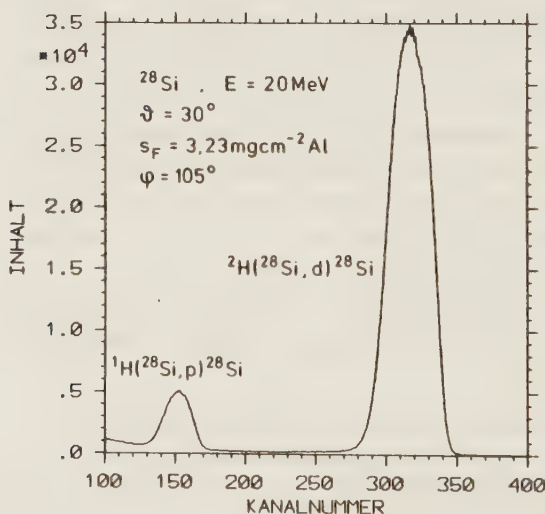
3.3 Ionenstrahlinduzierte Desorption

Die in Abs. 3.2.3 beschriebene thermische Desorption des Wasserstoffs aus dem Titan ist bei Temperaturen $T < 500 \text{ K}$ vernachlässigbar klein, denn der Wasserstoff verbleibt fast

vollständig innerhalb von Meßzeiten der Größenordnung einiger tausend Sekunden im Titan. Deshalb wird bei den im folgenden beschriebenen Experimenten die Targettemperatur immer kleiner als 500 K gewählt, um die thermische und die ionenstrahlinduzierte Desorption voneinander zu trennen.

Der experimentelle Ablauf der ionenstrahlinduzierten Desorption sah wie folgt aus. Nachdem die Deuteronen in das Titan eingelagert und die Targetanalysen bezüglich der Verunreinigungen durchgeführt worden waren, wurde das Target auf die gewünschte Temperatur gebracht. Der gewählte Schwerionenstrahl mit definierter Energie und Stromdichte wurde eingestellt und das Target für die ERD-Methode ausgerichtet. Anschließend wurde das Target mit dem Schwerionenstrahl beschossen und das resultierende ERD-Spektrum aufgenommen.

Fig. 3.15 zeigt ein solches typisches Spektrum mit ^{28}Si der Energie $E = 20 \text{ MeV}$ als Projektil. Die beiden Linien stammen von den Protonen und Deuteronen der ERD-Streuungen. Sie



sind voneinander getrennt und untergrundfrei. Ihre Breiten sind durch die Verteilung des Wasserstoffs in der Titanschicht bedingt.

Der Beschuss wurde ununterbrochen mit konstanter Parametereinstellung (Targettemperatur, Ionenstromdichte und Kammeratmosphäre) fortgesetzt. Während des Beschusses

Fig. 3.15: ERD-Spektrum bei Bestrahlung des deuteriumbeladenen Ti/Ni-Targets mit Si-Ionen

ses wurden in regelmäßigen Zeitabständen die Integrale der beiden ERD-Linien des Spektrums vom PDP 11 Rechner erfaßt und in willkürlichen Zeitschritten ein komplettes ERD-Spektrum gespeichert.

Die gemessenen Spektren wurden mit dem schon in Abs. 3.2.2 erwähnten Computerprogramm "AUDIVE" in Tiefenprofile konvertiert. Fig. 3.16 zeigt eine Reihe solcher Tiefenprofile, und zwar in Teil (a) für Deuteronen und in Teil (b) für Protonen mit Si-Ionen der Energie $E = 12$ MeV als Projektile. Zunächst interessieren nur die obersten Linien in (a) und (b); die anderen stellen eine Profilentwicklung dar, auf die unten noch eingegangen wird.

Die Dicke der Titanschicht betrug speziell bei dieser Messung $s_{Ti} = 80$ nm. Die Oberfläche und das Ende der Schicht sind in Fig. 3.16 durch Pfeile gekennzeichnet. Der endliche Wert der Wasserstoffkonzentration an der Oberfläche und in negativen Tiefen resultiert aus dem begrenzten Auflösungsvermögen der ERD-Methode. In Abs. 3.1.3 wurde die Tiefenauflösung als ungefähr konstant über die Tiefe ermittelt; sie ist hier in Form der Fehlerbalken eingezeichnet.

Berücksichtigt man dieses Auflösungsvermögen, so stehen die Tiefenprofile für Deuteronen und Protonen in Einklang mit einer über die Titantiefe konstanten Wasserstoffverteilung, zumal die Deuteronen dieselbe Profilform wie die Protonen aufweisen. Die Protonen werden nicht implantiert, sondern gelangen vermutlich, ebenso wie der Sauerstoff, schon beim Aufdampfen in die Titanschicht und nehmen mit großer Wahrscheinlichkeit eine homogene Konzentrationsverteilung ein. Eine Intensitätserhöhung des Protonensignals an der Oberfläche, z. B. durch adsorbierte H_2O -Moleküle, ist nicht zu sehen. Im Grenzbereich zwischen Titan und Nickel fällt dann die Deuteronenkonzentration rasch bis auf Null ab. Die Protonenkonzentration im Nickel ist vernachlässigbar klein ($\approx 0,2\% D/Ti$).

Desweiteren ist in Fig. 3.16 die Entwicklung der Tiefen-

profile unter Schwerionenbeschuß aufgezeigt. Die zu den jeweiligen Profilen gehörenden Bestrahlungsdosen d sind in dem Diagramm aufgeführt. Man erkennt eine deutliche Abnahme der Deuteronen- und Protonenkonzentration mit steigender Dosis der Si-Ionen. Die Form der Profile ändert sich im Rahmen des

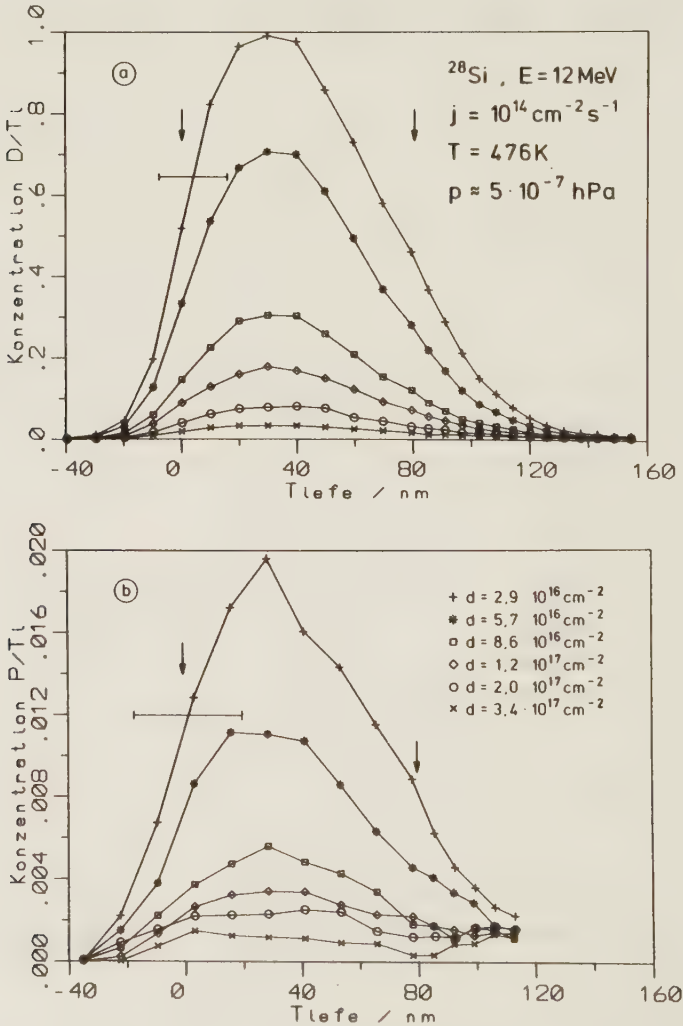


Fig. 3.16: Tiefenprofilentwicklung für Deuteronen (a) und Protonen (b) für steigende Si-Dosen d

Auflösungsvermögens nicht. Dies entspricht einer gleichmäßigen Konzentrationsabnahme über die ganze Tiefe der Titanschicht. Insbesondere ist keine Verschiebung der Konzentration in größere Tiefen (Konzentrationserhöhung im Nickel) festzustellen, woraus geschlossen werden kann, daß der Wasserstoff das Titan nur durch die Ti-Oberfläche und nicht durch einen Übergang in das Nickelvolumen verläßt. Dieses Verhalten wird bei allen anderen Parametereinstellungen ebenso beobachtet.

Durch Integration der Tiefenprofile über die Tiefe ergeben sich die mittleren Konzentrationen in der Titanschicht. Diese Konzentrationen sind für Deuteronen (linke Skala) und Protonen (rechte Skala) in Abhängigkeit von der Si-Dosis in Fig. 3.17 dargestellt. Die beiden Kurvenverläufe sind identisch. Von Bestrahlungsbeginn an nehmen die Konzentrationen ab, die Kurven werden dann steiler, durchlaufen einen Maximalwert der Neigung, um bei niedrigen Konzentrationen wieder flacher zu werden. Die Protonenkonzentration beträgt nur etwa 2% der Deuteronenkonzentration. Da die Geschwindigkeit der

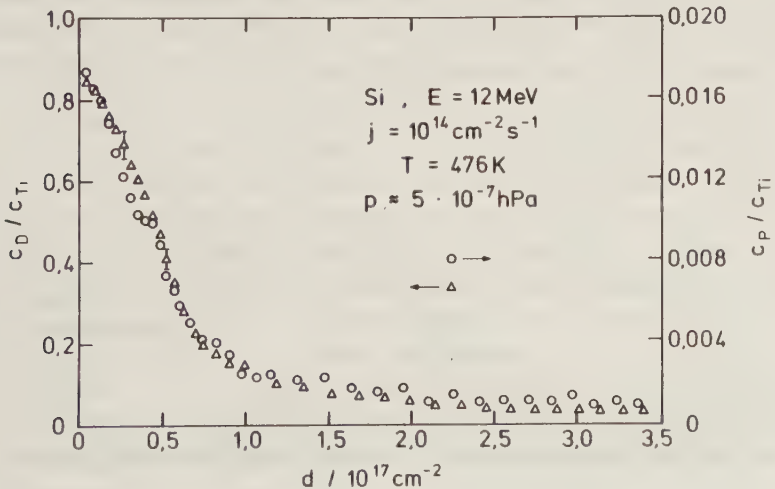


Fig. 3.17: Mittlere Konzentration der Deuteronen (linke Skala) und der Protonen (rechte Skala) in der Titanschicht in Abhängigkeit von der Bestrahlungsdosis d

Konzentrationsabnahme auch von der Konzentration selbst abhängt (Abs. 4.2), folgt aus der Übereinstimmung der beiden Kurven, daß Deuteronen und Protonen für den hier betrachteten Effekt der Ionenstrahlinduzierten Desorption als absolut gleichwertig anzusehen sind und nur die Summe beider Konzentrationen die Desorptionsrate bestimmt. Aufgrund der in der Regel viel höheren Deuteronenkonzentration kann man oftmals die Protonenkonzentration vernachlässigen, weil allein die Unsicherheit im Absolutwert der Wirkungsquerschnitte der ERD-Methode größer ist.

Parallel zu der ERD-Analyse des im Titan vorhandenen Wasserstoffs mittels des Schwerionenstrahls wird der Wasserstoffpartialdruck in der Meßkammer während des Freisetzens mit dem Restgasanalysator überwacht. Fig. 3.18 zeigt den Ausschnitt eines Restgasspektrums mit dem Partialdruck als Ordinate und der Zeit als Abszisse. Dabei gilt die Zuordnung: 3 $\hat{=}$ HD-Molekül, 4 $\hat{=}$ D₂-Molekül und 5 $\hat{=}$ Null-Niveau. Das Anwachsen der Linie des D₂-Moleküls nach dem Einschalten des Ionenstrahls dokumentiert den Aufbau einer D₂-Atmosphäre in der Kammer durch molekulares Abgasen des Deuteriums von der Targetoberfläche. Dagegen werden die HD-Moleküle an den Kammerwänden, die immer ausreichend Protium enthalten, gebildet, indem die dem Target entstammenden D₂-Moleküle dort disso-

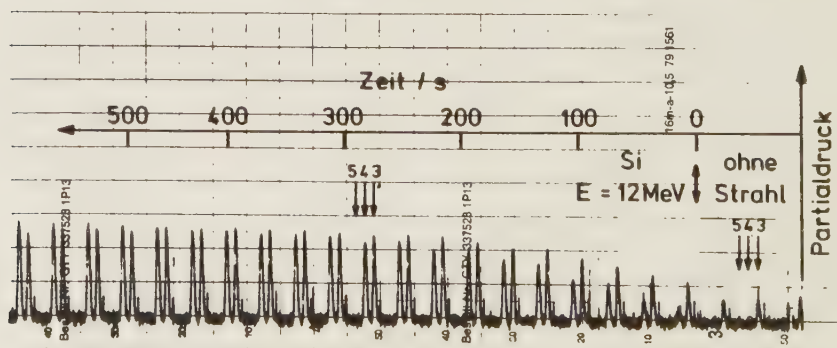


Fig. 3.18: HD- (3) und D₂-Partialdruck (4) als Funktion der Zeit; (5): Null-Niveau
(Original des Schreiberdiagramms)

zieren, mit dem Protium rekombinieren und wieder desorbieren. Daher steigt ebenfalls der Partialdruck der HD-Moleküle. Jedoch kann nicht völlig ausgeschlossen werden, daß ein Bruchteil des Deuteriums durch den Ionenstrahl auch atomar emittiert wird, um dann ebenso an den Kammerwänden mit Protium zu rekombinieren. Wegen der hohen Intensität der hier nicht dargestellten Linie des H_2 -Moleküls (s. Fig. 2.3) läßt sich die Nachbarlinie des HD-Moleküls nicht ganz untergrundfrei einstellen.

An dieser Stelle soll nur der prinzipielle Effekt der Ionenstrahlinduzierten Desorption gezeigt werden, eine eingehende Untersuchung folgt in den Kapiteln 4 bis 6 dieser Arbeit.

3.4 Testmessungen

Um die im vorigen Abschnitt dargestellte Wasserstoffabnahme während des Schwerionenbeschusses eindeutig einer Wechselwirkung zwischen den schweren Ionen und den Wasserstoffatomen zuordnen zu können, wurden zwei Testmessungen durchgeführt.

Die erste Messung sollte das Wasserstofffreisetzen als auf den Strahlfleck begrenzt und damit die Bedeutungslosigkeit einer eventuellen Temperaturerhöhung durch den Ionenbeschuß dokumentieren. Dazu wurde das Titan unter einer Winkereinstellung von $\varphi = 105^\circ$ mit Deuteronen beladen, wodurch die großen elliptischen Bereiche mit hoher Deuteriumkonzentration resultierten (Fig. 3.19). Wegen des hier um einen Faktor 3 kleiner dimensionierten Schwerionenstrahls kann ein Implantationsfleck zwei eng benachbarte Freisetzflecke aufnehmen. Die Wasserstoffkonzentrationen in beiden Freisetzflecken wurden gemessen, und anschließend wurde der Wasserstoff durch den Ionenbeschuß aus einem Fleck bei Raumtemperatur freigesetzt. Dies beeinflusste den Wasserstoff in dem anderen unmittelbar daneben liegenden Bereich ($\Delta x = 0,5 \text{ mm}$) nicht, denn die Wasserstoffkonzentration war dort unverändert hoch geblieben.

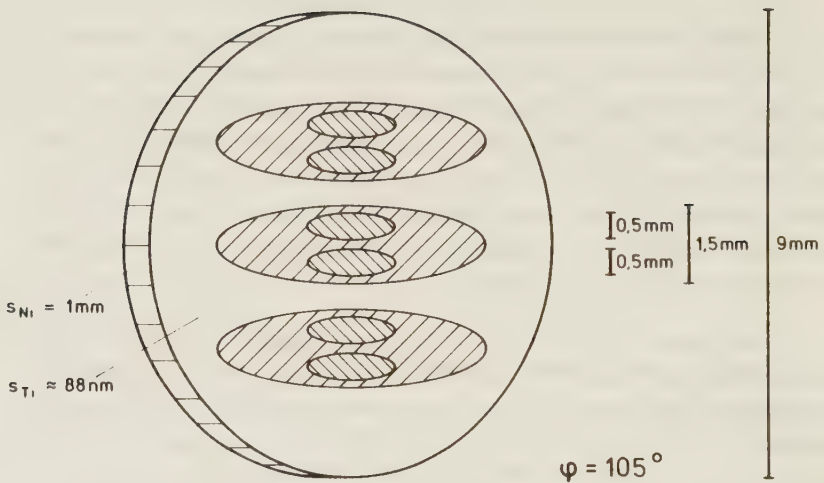


Fig. 3.19: Implantationsflecke (große Ellipsen) und Freisetzungsflecke (kleine Ellipsen) auf dem Ti/Ni-Target

Das Freisetzen findet also ausschließlich im Strahlfleck statt. Dort kann die Temperatur nicht in den Bereich der thermischen Desorption ($T > 500\text{ K}$) gelangt sein, denn dies würde einen Effekt bewirken, der nicht so eng auf den Strahlfleck begrenzt wäre. Durch den Ionenstrahl ausgelöste thermische Desorption ist daher auszuschließen.

Der zweite Untersuchungskomplex betrifft die Unversehrtheit des Titans unter dem Schwerionenbeschuß. Eine theoretische Abschätzung, die die Dominanz der nuklearen Bremsung /Sh74b/ für die Zerstäubung von Metalloberflächen /Be81a/ und eine Extrapolation von der Zerstäubungsrate von Argon /Ca68/ auf die der hochenergetischen Projektile beinhaltet, ergibt eine vernachlässigbare Zerstäubungsrate von ca. 0,02 Ti-Atome pro Einschubion. Die konstante Breite der Tiefenprofile in Fig. 3.16 dokumentiert ebenfalls die Erhaltung der Dicke der Titanschicht unter dem Schwerionenbeschuß.

Ein Wiederbeladungsversuch mit Deuteronen nach einem Freisetzungsexperiment sollte die unveränderte Wasserstoffkapa-

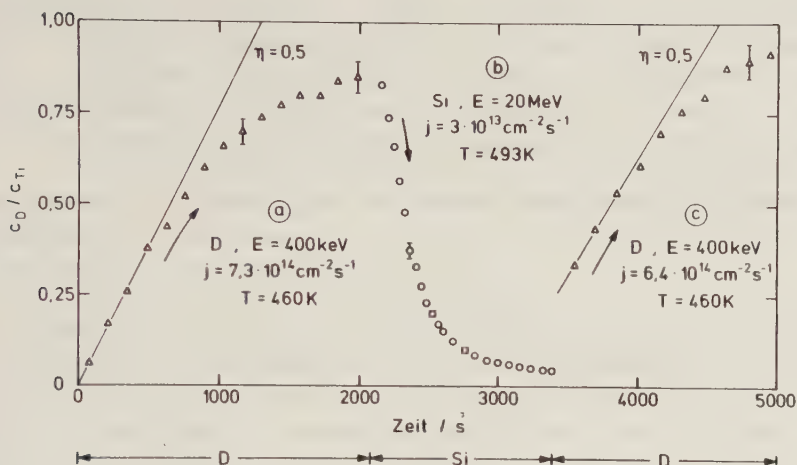


Fig. 3.20: Deuteronenkonzentration im Ti-Target in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit; (a) Beladen mit Deuteronen, (b) Freisetzen der Deuteronen durch Si-Beschuß und (c) Wiederbeladen mit Deuteronen

zität der Ti-Schicht bestätigen. Die Meßergebnisse dazu sind in Fig. 3.20 dargestellt. Aufgetragen ist die Deuteronenkonzentration in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit, und zwar in Teil (a) für das Erstbeladen mit Deuteronen, in Teil (b) für das Freisetzen durch Si-Ionen und in Teil (c) für das Nachbeladen wiederum mit Deuteronen. Man erkennt in Teil (a) zunächst einen Anstieg der Deuteronenkonzentration mit der Beladungswahrscheinlichkeit $\eta \approx 0,5$ (Abs. 3.2.1) bis zu einem Sättigungswert von ca. 0,9 D/Ti. Danach wurden die Deuteronen durch Beschuß mit einem hochenergetischen Si-Ionenstrahl geringeren Durchmessers freigesetzt (Teil (b)). Anschließend konnte die ursprüngliche Sättigungskonzentration durch Nachbeladen mit Deuteronen wieder vollständig erreicht werden (Teil (c)). Das bedeutet, daß sowohl die Titanmenge als auch deren Aufnahmefähigkeit für Wasserstoff unverändert geblieben ist.

Ergänzend zu Teil (c) sei noch bemerkt, daß der, im Vergleich zum Ende von Teil (b), erhöhte Startwert der Deutero-

nenkonzentration durch den größeren Durchmesser des Deuteronenstrahls relativ zum Si-Ionenstrahl erklärt werden kann. Die Si-Ionen reduzieren nur in einem Teil des Deuteronenstrahlflecks die Konzentration, der Rest bleibt erhalten und verursacht die folgende erhöhte Startkonzentration.

4. Theorie

4.1 Theorie der Desorption

Die Wasserstoffkonzentration im Metall hängt im Gleichgewichtsfall zwischen ein- und austretenden Wasserstoffatomen von dem Druck der Wasserstoffatmosphäre, der Temperatur und dem Metall selbst ab.

Bei genügend niedrigen Temperaturen ist der Wasserstoff in jedem Metall unbeweglich. Bei höheren Temperaturen beginnt er zu diffundieren, wobei er auf seinem Weg im Metallgitter ggf. von Haftstellen eingefangen werden kann. Durch thermische Energiezufuhr kann der Wasserstoff diese Haftstellen wieder verlassen. Schließlich wird er an die Oberfläche gelangen, dort zu Molekülen rekombinieren und desorbieren. Umgekehrt gilt, daß aus der Atmosphäre auf die Oberfläche treffende Wasserstoffmoleküle dort dissoziieren, chemisorbieren und dann in das Metall hinein diffundieren.

4.1.1 Mathematische Entwicklung

Zur mathematischen Quantifizierung des soeben qualitativ beschriebenen Wasserstoff-Metall Systems ist es sinnvoll, die Übergänge der Wasserstoffatome an den Grenzflächen Vakuum - Metalloberfläche - Metallvolumen näher zu betrachten. Die Methode, durch Verknüpfung der weiter unten aufgeführten Einzelprozesse eine analytische Lösung zu finden, ist schon früher für verschiedene spezielle Problemstellungen verwendet worden /As59, Be73, Ba80a/.

Zur Veranschaulichung der folgenden Überlegungen dient Fig. 4.1. Dort sind sechs verschiedene Teilchenübergänge dargestellt, die bei der Absorption und Desorption eines zweiatomigen Gases stattfinden können. Für jeden Übergang wird eine Ratengleichung R_i mit der Dimension einer Stromdichte aufgestellt, wobei Ratenkonstanten k_i mit unterschiedlichen

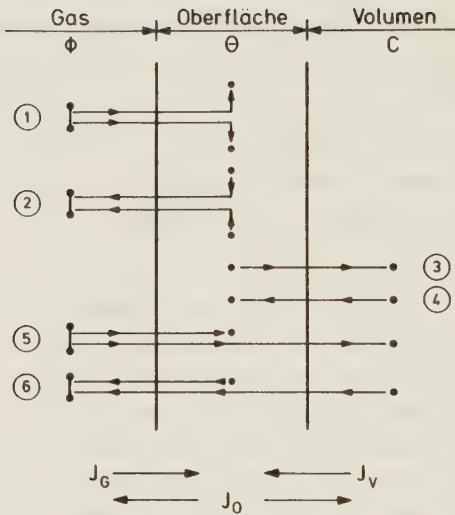


Fig. 4.1:

Schematische Übersicht
der Teilchenübergänge
an der Grenzschicht
Gasraum - Metallober-
fläche - Metallvolumen

physikalischen Bedeutungen auftreten.

Prozeß (1) beschreibt das Auftreffen eines Moleküls aus dem Gasraum auf die Oberfläche und die Dissoziation in zwei Atome, die an der Oberfläche unkorreliert chemisorbieren:

$$R_1 = k_1 \cdot \Phi \cdot (1 - \Theta)^2 \quad (4.1)$$

$$\Theta = \nu / \nu_m$$

mit k_1 : Haftkoeffizient für die unkorrelierte Chemisorption zweier Atome auf der Oberfläche, Φ : Stromdichte der Gasmoleküle auf die Oberfläche, Θ : Bedeckungsgrad der Oberfläche, ν : Oberflächenbedeckung und ν_m : maximale Oberflächenbedeckung.

Prozeß (2) beschreibt das umgekehrte Verhalten, nämlich den Zusammenschluß zweier chemisorbierter Atome zu einem Molekül und anschließende Desorption:

$$R_2 = k_2 \cdot \Theta^2 \quad (4.2)$$

mit k_2 : maximale molekulare Stromdichte bei vollständiger

Oberflächenbedeckung.

Der dritte Prozeß (3) ist der Übergang eines chemisorbierten Atoms von der Oberfläche in das Volumen:

$$R_3 = k_3 \cdot c_C \cdot \Theta = k'_3 \cdot \Theta \quad (4.3)$$

c_C ist die Anzahl der chemisorbierten Atome auf der Oberfläche pro Volumeneinheit. k_3 hat die Bedeutung einer Geschwindigkeit der Oberflächenteilchen in Richtung des Volumens und kann als Produkt aus einer Sprungfrequenz und einer Sprungweite angesehen werden. k'_3 ist die maximale atomare Stromdichte in das Volumen bei vollständiger Oberflächenbedeckung.

Der inverse Prozeß (4) ist der Sprung eines Atoms aus dem Volumen an die Oberfläche:

$$R_4 = k_4 \cdot c \cdot (1 - \Theta) \quad (4.4)$$

mit c : Konzentration der Atome im Volumen und k_4 : Geschwindigkeit der Volumenteilchen in Richtung der Oberfläche.

Außer den bisher beschriebenen Vorgängen, bei denen jeweils zwei Bereiche (Gasraum - Oberfläche, Oberfläche - Volumen) beteiligt sind, können auch noch Übergänge unter Beteiligung aller drei Regionen auftreten. Prozeß (5) zeigt das Auftreffen eines Moleküls auf die Oberfläche mit nachfolgender Dissoziation, wobei ein Atom an der Oberfläche chemisorbiert und das zweite in das Volumen gelangt:

$$R_5 = k_5 \cdot \Phi \cdot (1 - \Theta) \quad (4.5)$$

mit k_5 : Haftkoeffizient für die Chemisorption eines Atoms auf der Oberfläche und Übergang des anderen Atoms ins Volumen.

In dem dazu inversen Prozeß (6) springt ein Atom aus dem Volumen an die Oberfläche, verbindet sich dort mit einem chemisorbierten Atom zu einem Molekül, und dieses desorbiert ins Vakuum:

$$R_6 = k_6 \cdot c \cdot \theta \quad (4.6)$$

mit k_6 in der gleichen Bedeutung wie k_4 .

Darüberhinaus könnte man sich noch Prozesse vorstellen, bei denen die Oberfläche nicht beteiligt ist und die Übergänge zwischen Volumen und Gasraum direkt und unabhängig vom Oberflächenbedeckungsgrad θ stattfinden. Die entsprechenden Raten sind jedoch vernachlässigbar gegenüber denen der Prozesse (1) bis (6), weil immer zwei korrelierte Atome durch die ganze Oberfläche hindurchtreten müssen.

Die Nettostromdichte von Atomen, die den Gasraum verlassen, J_G (s. Fig. 4.1) ist:

$$J_G = 2 \cdot (R_1 + R_5 - R_2 - R_6) \quad (4.7),$$

die Nettostromdichte von Atomen, die die Oberfläche verlassen, J_O ist:

$$J_O = 2 \cdot R_2 + R_3 + R_6 - 2 \cdot R_1 - R_4 - R_5 \quad (4.8)$$

und die Nettostromdichte von Atomen, die das Volumen verlassen, J_V ist:

$$J_V = R_4 + R_6 - R_3 - R_5 \quad (4.9).$$

Da kein Atom das System verläßt, ist die Summe dieser Stromdichten gleich Null.

Unter der Voraussetzung eines sehr guten Vakuums ($\Phi \approx 0 \Rightarrow R_1 = R_5 = 0$) und mit dem zunächst einfachsten Ansatz des quasistationären Ausgasens, d. h. $J_O \approx 0$ (und damit $J_G = -J_V$), $\frac{\partial \theta}{\partial t} \approx 0$ und $\frac{\partial c}{\partial t} \approx 0$, ergibt sich aus Gl. (4.8) durch Einsetzen von Gl. (4.2) - (4.6):

$$\Theta = \frac{k_3' + (k_4 + k_6) \cdot c}{4 \cdot k_2} \cdot \left(\sqrt{\frac{8 \cdot k_2 \cdot k_4 \cdot c}{(k_3' + (k_4 + k_6) \cdot c)^2} + 1} - 1 \right)$$

$$= 0 \quad \text{für } c \rightarrow 0 \quad (4.10)$$

$$= 1 \quad \text{für } c \rightarrow \infty$$

Die Stromdichte J_V ist im stationären Fall gleich der Desorptionsstromdichte ($-J_G$). Mit den Gleichungen (4.3) - (4.6), (4.9) und (4.10) ergibt sich:

$$J_V = \frac{(k_3' + k_4 \cdot c)^2 - (k_6 \cdot c)^2}{4 \cdot k_2} \cdot \left(1 - \sqrt{\frac{8 \cdot k_2 \cdot k_4 \cdot c}{(k_3' + (k_4 + k_6) \cdot c)^2} + 1} \right) + k_4 \cdot c \quad (4.11)$$

Die Wurzel in Gl. (4.11) läßt sich annähern durch

$$\sqrt{\frac{8 \cdot k_2 \cdot k_4 \cdot c}{(k_3' + (k_4 + k_6) \cdot c)^2} + 1} \approx 1 + \frac{4 \cdot k_2 \cdot k_4 \cdot c}{(k_3' + (k_4 + k_6) \cdot c)^2} - \frac{8 \cdot k_2^2 \cdot k_4^2 \cdot c^2}{(k_3' + (k_4 + k_6) \cdot c)^4} \quad (4.12)$$

Die Abweichung des Näherungswertes von dem exakten Wert ist für große und kleine c vernachlässigbar, für mittlere Werte muß $k_3' \gg k_2$ gelten.

Da Prozeß (6) den Prozeß (4) beinhaltet mit zusätzlicher Rekombination zweier Atome an der Oberfläche und anschließender molekularer Desorption, gilt die Vernachlässigung

$$k_6 \ll k_4 \quad (4.13)$$

Aus den Gleichungen (4.11) - (4.13) folgt mit $k_3' = k_3 \cdot c_C$ aus Gl. (4.3):

$$J_V = 2 \cdot k_2 \cdot (k_4/k_3)^2 \cdot (c/c_C)^2 \cdot \left(1 + \frac{k_4 \cdot c}{k_3 \cdot c_C} \right)^{-2} \quad (4.14a)$$

$$= 2 \cdot k_2 \cdot \left(\frac{k_4 \cdot c}{k_3 \cdot c_C} \right)^2 \quad \text{für } \frac{k_4 \cdot c}{k_3 \cdot c_C} \ll 1 \quad (4.14b)$$

$$= 2 \cdot k_2 \quad \text{für } \frac{k_4 \cdot c}{k_3 \cdot c_C} \gg 1 \quad (4.14c)$$

Aus Gl. (4.14) folgt bei hohen Konzentrationen c im Volumen eine konstante Desorptionsstromdichte J_V , zu kleinen Konzentrationen nimmt sie ab und mündet schließlich in eine quadratische Konzentrationsabhängigkeit. Die Größe k_2 hat die Bedeutung der maximalen molekularen Desorptionsstromdichte von der Oberfläche. Das dimensionslose Ratenverhältnis k_4/k_3 gibt die Wahrscheinlichkeit für den Übergang eines Teilchens vom Volumen an die Oberfläche gegenüber der umgekehrten Richtung an, wobei sowohl die Oberflächenbedeckung als auch die Konzentration im Volumen als klein vorausgesetzt sind.

Die Bestimmung von k_2 und k_4/k_3 aus den Messungen läßt sich am einfachsten durchführen, wenn man die maximale Steigung der Kurve J_V als Funktion von c aufsucht. Dies geschieht durch zweimaliges Differenzieren von Gl. (4.14a) nach der Konzentration c , und man erhält:

$$\frac{\partial^2 J_V}{\partial c^2} = 4 \cdot k_2 \cdot (k_4/k_3)^2 \cdot (1 - 2 \cdot \frac{k_4}{k_3} \cdot \frac{c}{c_C}) \cdot (1 + \frac{k_4}{k_3} \cdot \frac{c}{c_C})^{-4} \quad (4.15)$$

Durch Nullsetzen von Gl. (4.15) ergibt sich die Konzentration c_m , bei der die Steigung maximal ist, und es gilt:

$$k_4/k_3 = 0,5 \cdot (c_C/c_m) \quad (4.16)$$

Einsetzen von Gl. (4.16) in Gl. (4.14a) liefert:

$$k_2 = 4,5 \cdot J_V(c_m) \quad (4.17)$$

mit $J_V(c_m)$: Desorptionsstromdichte bei der Konzentration c_m .

4.1.2 Qualitativer Vergleich von Theorie und Experiment

An dieser Stelle muß ein erster Vergleich der Theorie mit dem Experiment zeigen, ob die Theorie das Experiment überhaupt beschreiben kann.

Fig. 4.2 zeigt eine typische Meßkurve, wie sie aus der in Abs. 3.3 beschriebenen Versuchsdurchführung gewonnen wurde. Aufgetragen ist das Desorptionsverhältnis (Desorptionsstromdichte J_V normiert auf die Einschußstromdichte j) in Abhängigkeit von der Deuteronenkonzentration. Da j konstant ist, sind die Desorptionsstromdichte J_V und das Desorptionsverhältnis J_V/j äquivalente Größen. Ebenso kann die maximale Desorptionsstromdichte auf j normiert werden ($k_2' = k_2/j$). Die Fehler der Meßpunkte sind hier und in den folgenden Darstellungen ungefähr so groß wie die Streuung der Punkte um die Ausgleichskurve. Wenn man die ersten beiden Punkte bei hoher Konzentration zunächst außer acht läßt (Diskussion folgt unten), ergibt sich qualitativ der nach Gl. (4.14) erwartete Kurvenverlauf. Bei hohen Konzentrationen ist J_V/j konstant, nimmt dann mit kleiner werdender Konzentration ab und ist bei niedrigen Konzentrationen mit einer quadratischen Konzentrationsabhängigkeit verträglich.

Um quantitative Aussagen machen zu können, wird die Teilchendichte des Chemisorbats c_C gleich der Teilchendichte

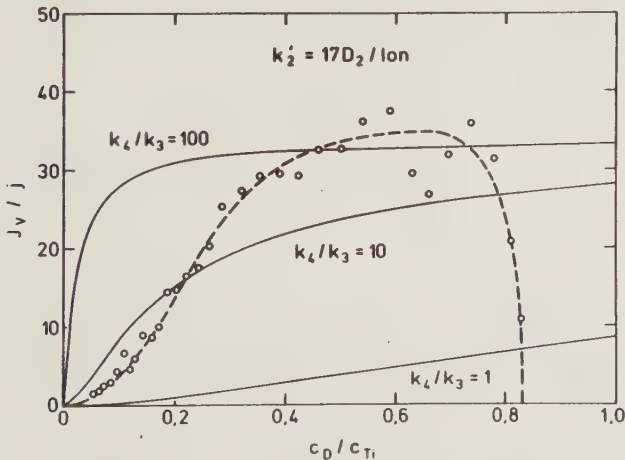


Fig. 4.2: Auf die Ionenstromdichte j normierte Desorptionsstromdichte J_V in Abhängigkeit von der Deuteronenkonzentration im Titan (o: Experiment, ---: Sichthilfe, —: Theorie)

des Titans c_{Ti} gesetzt, weil dünne Chemisorbatschichten sehr wahrscheinlich dieselbe Struktur wie das Trägermaterial annehmen. Mit (4.14c) ergibt sich aus dem gemessenen Plateau ein Wert von $k_2' = 17 \text{ D}_2/\text{Ion}$. Die Theoriekurven für 3 willkürliche Werte von k_4/k_3 sind in Fig. 4.2 als durchgezogene Linien dargestellt. Man erkennt, daß das theoretische Verhältnis J_V/j bei kleiner Konzentration viel zu hoch ist, wenn das Plateau im richtigen Konzentrationsbereich erreicht werden soll. Nähert man dagegen k_4/k_3 so, daß die Theoriekurve bei niedrigen Konzentrationen die Meßwerte beschreibt, liegt der Plateaubereich der Theoriekurve bei viel zu hohen Konzentrationen.

Andererseits kann man versuchen, die Kurve mit Hilfe der Gl. (4.15) - (4.17) anzupassen. Die Steigung der gestrichelten Ausgleichskurve in Fig. 4.2 ist bei $c_m = 0,22 c_{Ti}$ maximal; dort ist $J_V(c_m) = 15 \cdot j$. Mit (4.16) und (4.17) resultieren als maximale Desorptionsstromdichte $k_2' = 67,5 \text{ D}_2/\text{Ion}$ und als Ratenverhältnis $k_4/k_3 = 2,27$. Diese beiden Parameter ergeben

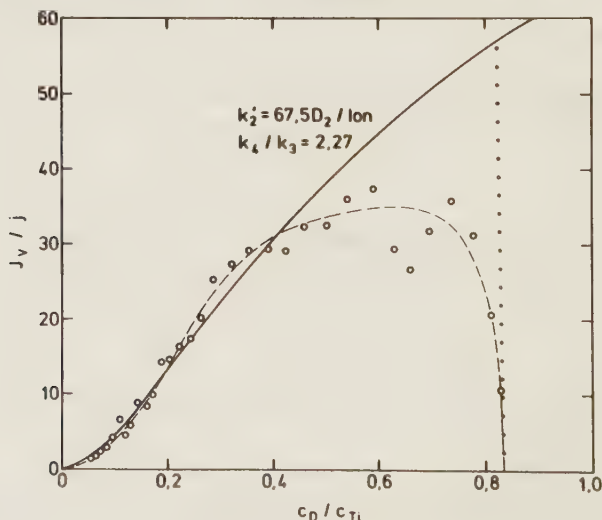


Fig. 4.3: Auf die Ionenstromdichte j normierte Desorptionsstromdichte J_V in Abhängigkeit von der Deuteronenkonzentration im Titan; theoretische Anpassung (durchgezogene Linie) mit Aufbau einer Oberflächenbedeckung (gepunktete Linie); ---: Sichthilfe

eine Theoriekurve, die als durchgezogene Linie in Fig. 4.3 dargestellt ist. Die Achsenbezeichnungen und die Meßpunkte sind dieselben wie in Fig. 4.2. Die gestrichelte Linie dient wieder der Sichthilfe. Bei Konzentrationen kleiner als 0,5 D/Ti zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit der Messung im Rahmen der Meßunsicherheit. Dagegen gibt es bei höheren Konzentrationen eine sehr starke Diskrepanz.

Die Theorie wurde bisher mit dem Ansatz des quasistationären Ausgasens ($J_0 = 0$) entwickelt. Da der Effekt des Freisetzens aber erst durch den Ionenstrahl ausgelöst wird, muß während der ersten Zeitspanne nach Bestrahlungsbeginn ein Ungleichgewicht herrschen ($J_0 \neq 0$). Das Experiment zeigt ein Ansteigen des Desorptionsverhältnisses J_V/j zu Anfang der Bestrahlung. Mit Gl. (4.2) - (4.4), (4.8), (4.13) und bei sehr gutem Vakuum ($\Phi \approx 0$) ergibt sich folgende Differentialgleichung:

$$\dot{\Theta} = - \frac{J_0}{\nu_m} = \nu_m^{-1} \cdot (-2 \cdot k_2 \cdot \Theta^2 - k_3' \cdot \Theta + k_4 \cdot c \cdot (1 - \Theta)) \quad (4.18)$$

Unter der Annahme einer konstanten Konzentration c ist Gl. (4.18) vom Riccatischen Typ mit der Lösung für $\Theta(t=0) = 0$:

$$\Theta = \frac{2 \cdot \nu_m^{-1} \cdot k_4 \cdot c \cdot (1 - \exp(-u \cdot t))}{u + v + (u - v) \cdot \exp(-u \cdot t)}$$

$$u = \sqrt{(k_3' + k_4 \cdot c)^2 + 8 \cdot k_2 \cdot k_4 \cdot c} \cdot \nu_m^{-1} \quad (4.19)$$

$$v = (k_3' + k_4 \cdot c) \cdot \nu_m^{-1}$$

Setzt man einen Wert von 2 für $k_3'/k_2 \gg 1$ als Minimum an, so ergibt sich mit der maximalen Desorptionsstromdichte $k_2' = 67,5$ D₂/Ion, dem Ratenverhältnis $k_4/k_3 = 2,27$ bei der Stromdichte $j = 3 \cdot 10^{13}$ cm⁻² s⁻¹ und einem $\nu_m = 4,5 \cdot 10^{15}$ cm⁻², wie es in Abs. 6.4.2 noch abgeschätzt werden wird, für die Zeitkonstante $1/u = 0,2$ s. Die mittlere Konzentrationsabnahme liegt unter 1 Promille D/Ti in dieser Zeit. Damit ist auch der obige Ansatz $c = \text{konst.}$ gerechtfertigt. Der theoretische

Anstieg des Desorptionsverhältnisses ist als gepunktete Linie in Fig. 4.3 eingezeichnet. Er ist sehr steil und gibt den experimentellen Verlauf in keiner Weise wieder. Für größere k_3'/k_2 Verhältnisse würde der Anstieg noch steiler werden.

Zusammenfassend muß festgestellt werden, daß die generelle Form der Kurve (Anstieg, Plateau, Abnahme) zwar durch die Theorie mit Anstiegsphase bei Bestrahlungsbeginn beschrieben, aber quantitativ nicht mit dem Experiment in Übereinstimmung gebracht werden kann.

4.2 Modellerweiterung auf Gaseinfluß

Im vorigen Abschnitt wurde ein Modell entwickelt, das die Desorptionsstromdichte J_v in Abhängigkeit von der Konzentration bei kleinen Konzentrationen sehr gut beschreibt, aber bei hohen Konzentrationen zu Bestrahlungsbeginn sehr starke Abweichungen vom Experiment aufweist. Auch der Ansatz des Auffüllens der Oberfläche mit Wasserstoff aus dem Volumen zu Anfang der Messung brachte keinen Erfolg. In diesem Abschnitt wird nun das Modell dahingehend erweitert, daß auch Einflüsse von Gasen der Kammeratmosphäre berücksichtigt werden.

Der Unterschied zu den bisherigen Modellannahmen besteht darin, daß die Targetoberfläche vor der Messung der ionenstrahlinduzierten Desorption weder chemisorbierte Wasserstoffatome enthält noch unbedeckt ist, sondern durch eine chemisorbierte Gasschicht (kein Wasserstoff) vollständig belegt ist. Die Gasatome werden durch den Schwerionenbeschuß entfernt und machen damit Platz für den aus dem Volumen nachrückenden Wasserstoff, der dann desorbiert werden kann.

Der einfachste Ansatz für die Beschreibung des Abgasens von der Oberfläche enthält nur Prozeß (2) in Fig. 4.1 (Gl. (4.2)), und es ergibt sich:

$$-\frac{J_{O,G}}{\nu_{m,G}} = \dot{\Theta}_G = -\frac{2 \cdot k_{2,G} \cdot \Theta_G^2}{\nu_{m,G}} \quad (4.20)$$

$$\Theta_G = \nu_G / \nu_{m,G}$$

mit Θ_G : Bedeckungsgrad der Oberfläche mit Gasatomen, ν_G : Oberflächenbedeckung mit Gasatomen, $\nu_{m,G}$: maximale Oberflächenbedeckung mit Gasatomen, $J_{O,G}$: Desorptionsstromdichte der Gasatome und $k_{2,G}$: maximale Desorptionsstromdichte der Gasmoleküle. Der Index G kennzeichnet die auf die Gasatome bezogenen Größen im Unterschied zu den Größen ohne diesen Index, die sich auf die Wasserstoffatome beziehen.

Vorausgesetzt wird nun zum einen, daß sich dort, wo Wasserstoffatome auf der Oberfläche chemisorbiert sind, nicht gleichzeitig Gasatome anlagern können und umgekehrt. Daraus folgt die Addition der Einzelbedeckungsgrade (Θ , Θ_G) zum Gesamtbedeckungsgrad Θ_T ($= \Theta + \Theta_G$), der nun für die Wahrscheinlichkeit der Übergänge in die Oberflächenschicht verantwortlich wird. In (4.1), (4.4) und (4.5) muß Θ durch Θ_T ersetzt werden. Zum anderen wird verlangt, daß die von der Oberfläche desorbierenden Moleküle nur aus einem Element bestehen. Gleichung (4.20) bildet dann zusammen mit (4.8) und (4.9) ein Differentialgleichungssystem, das für den quasistationären Fall der Desorption analytisch gelöst werden kann.

Mit der Anfangsbedingung $\Theta_G(t=0) = 1$ resultiert dann aus (4.20):

$$\Theta_G = (2 \cdot \nu_{m,G}^{-1} \cdot k_{2,G} \cdot t + 1)^{-1} \quad (4.21)$$

und mit (4.1) - (4.9), (4.13) und $\Phi \approx 0$ ergibt sich:

$$-\frac{J_V}{s_{Ti}} = \dot{c} = \frac{(k_3' + k_4 \cdot c)^2}{4 \cdot k_2 \cdot s_{Ti}} \cdot \left(1 - \sqrt{\frac{8 \cdot k_2 \cdot k_4 \cdot \epsilon \cdot c}{(k_3' + k_4 \cdot c)^2 + 1}} \right) + \frac{k_4 \cdot \epsilon \cdot c}{s_{Ti}} \quad (4.22)$$

mit s_{Ti} : Dicke der Titanschicht und

$$\epsilon = \frac{2 \cdot \nu^{-1} \cdot k_{2,G} \cdot t}{2 \cdot \nu^{-1} \cdot k_{2,G} \cdot t + 1} \quad (4.23)$$

$$= 0 \quad \text{für } t \rightarrow 0$$

$$= 1 \quad \text{für } t \rightarrow \infty$$

Mit Gl. (4.12) ergibt sich aus Gl. (4.22):

$$-\frac{J_V}{s_{Ti}} = \dot{c} = \frac{2 \cdot k_2}{s_{Ti}} \cdot \left(\frac{k_4}{k_3}\right)^2 \cdot \frac{\epsilon^2 \cdot (c/c_C)^2}{\left(1 + \frac{k_4}{k_3} \cdot \frac{c}{c_C}\right)^2} \quad (4.24)$$

Gl. (4.23) bewirkt das Ansteigen der Desorptionsstromdichte J_V von Null ausgehend mit einer Zeitkonstanten proportional $1/k_{2,G}$. Die Einführung dieses neuen Parameters erlaubt eine sehr gute Anpassung an die Meßkurven über den ganzen Konzentrationsbereich. Dabei sind die Konzentration c und die Zeit t die Meßgrößen. In Fig. 4.4 ist eine solche Anpassung der Parameter k_2 , $k_{2,G}$ und k_4/k_3 an die im vorigen Abschnitt

schon gezeigte Meßkurve unter Verwendung von Gl. (4.24) dargestellt. Die Auftragung ist die gleiche wie in Fig. 4.3.

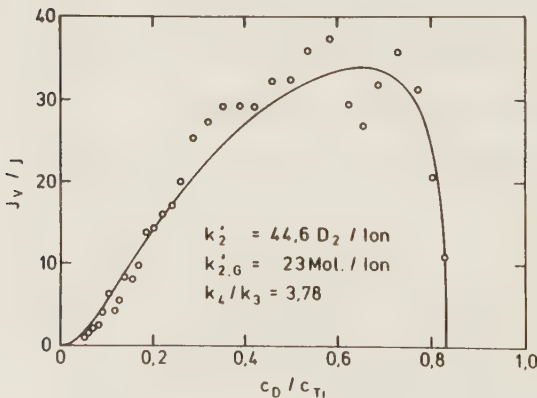


Fig. 4.4: Auf die Ionenstromdichte j normierte Desorptionsstromdichte J_V als Funktion der Deuteronenkonzentration (—: theor. Anpassung)

Durch numerisches Lösen des Differentialgleichungssystems (4.8), (4.9) und (4.20) kann man die Abweichung der Näherungslösung (4.24) überprüfen.

Dieser Vergleich ist mit dem Parametersatz der Fig. 4.4 durchgeführt worden, und es

zeigt sich, daß nur eine sehr kleine Differenz in der Desorptionsstromdichte J_V resultiert, die relativ zu der Meßunsicherheit für die Anpassung bedeutungslos ist.

Eine Gasschicht auf der Titanoberfläche hemmt also die Desorption des Wasserstoffs. Daher muß ein Gasstrom aus der Kammeratmosphäre auf das Target berücksichtigt werden, denn er verursacht eine Chemisorbatschicht aus Gasatomen im Gleichgewicht zwischen auftreffenden und abgasenden Atomen.

Die Gasstromdichte Φ_G ist ein Parameter in den Prozessen (1) und (5) der Fig. 4.1. Obwohl die Chemisorption zweier Gasatome an der Oberfläche (Prozeß (1)) energetisch günstiger ist als die Chemisorption des ersten und die Lösung des zweiten Atoms (Prozeß (5)), ist die Ratenkonstante $k_{1,G}$ klein gegen $k_{5,G}$, denn die Rekombination zweier soeben dissoziierter, aber noch korrelierter, Atome an der Oberfläche mit sofortiger Desorption wird die Ratenkonstante für Prozeß (1) sehr stark vermindern. Somit kann Prozeß (1) vernachlässigt werden. In Anlehnung an die internationale Nomenklatur wird der Haftkoeffizient $k_{5,G}$ im folgenden immer als γ bezeichnet.

Damit baut sich folgendes Differentialgleichungssystem unter Berücksichtigung von Gl. (4.1) - (4.9) und (4.13) auf:

$$-\frac{J_O}{\nu_m} = \dot{\theta} = \nu_m^{-1} \cdot (-2 \cdot k_2 \cdot \theta^2 - k_3' \cdot \theta + k_4 \cdot c \cdot (1 - \theta - \theta_G)) \quad (4.25a)$$

$$-\frac{J_V}{s_{Ti}} = \dot{c} = s_{Ti}^{-1} \cdot (k_3' \cdot \theta - k_4 \cdot c \cdot (1 - \theta - \theta_G)) \quad (4.25b)$$

$$-\frac{J_{O,G}}{\nu_{m,G}} = \dot{\theta}_G = \nu_{m,G}^{-1} \cdot (-2 \cdot k_{2,G} \cdot \theta_G^2 + \gamma \cdot \Phi_G \cdot (1 - \theta - \theta_G)) \quad (4.25c)$$

Falls Gl. (4.24) weiterhin Verwendung finden soll, müßte der Einfluß der Kammeratmosphäre vernachlässigbar sein. Mit (4.25) läßt er sich berechnen. Die für verschiedene Kammerdrücke resultierenden Kurven mit demselben obigen Parameter-

satz sind in Fig. 4.5 eingezeichnet, wobei eine reine Stickstoffatmosphäre und ein Haftkoeffizient $\gamma = 1$ vorausgesetzt wurde. Aufgetragen ist in Teil (a) das Desorptionsverhältnis J_V/j in Abhängigkeit von der Deuteronenkonzentration und in Teil (b) die Deuteronenkonzentration als Funktion der Bestrahlungszeit. Im Experiment der Fig. 4.5 betrug der Druck $p \approx 4 \cdot 10^{-8}$ hPa; niedrigere Drücke waren unter Strahlbedingungen nicht möglich. Schon bei diesem Druck tritt eine deutliche Verringerung des berechneten Desorptionsverhältnisses auf, die eine Vernachlässigung des Kammerdruckes nicht mehr zuläßt. Bei einem Druck von $p = 4 \cdot 10^{-5}$ hPa ist keine Konzentra-

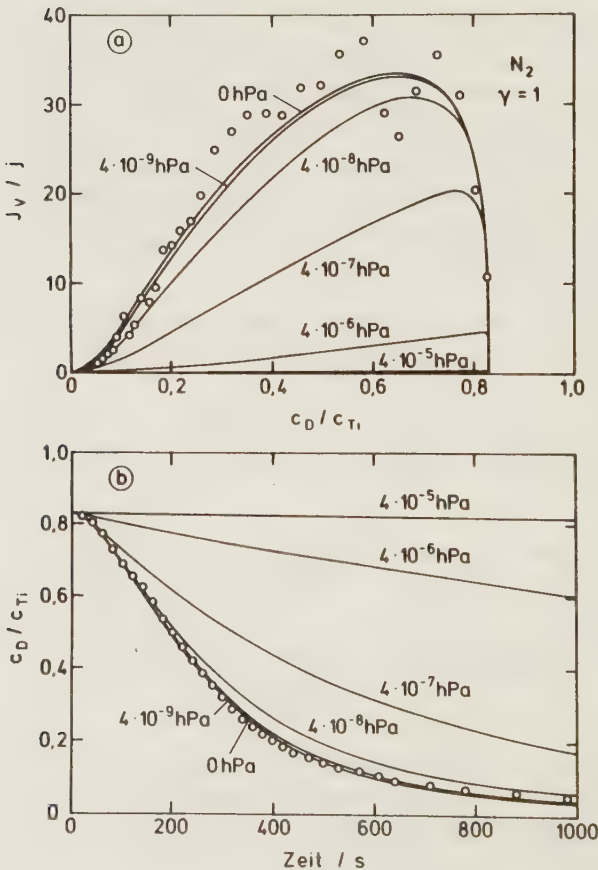


Fig. 4.5:

Desorptionsverhältnis J_V/j in Abhängigkeit von der Deuteronenkonzentration im Titan (a) und diese Konzentration in (b) als Funktion der Bestrahlungszeit.

Die durchgezogenen Linien sind Theoriekurven für verschiedene Gasdrücke mit dem Parametersatz der Fig. 4.4.

tionsabnahme mehr zu erwarten. Dann wird die Oberfläche so sehr mit Gasatomen belegt, die aus der Kammeratmosphäre dauernd nachgeliefert werden, daß der Anteil der Wasserstoffatome auf der Oberfläche vernachlässigbar klein ist und demnach keine Desorption stattfinden kann.

Gl. (4.24) kann somit nicht für die Anpassung der Parameter k_2 , $k_{2,G}$ und k_4/k_3 an die Meßergebnisse verwendet werden. Für die im folgenden Kapitel 5 dargestellten Meß- und Anpassungsergebnisse ist daher immer das Gleichungssystem (4.25) für die verschiedenen Meßreihen numerisch gelöst worden.

5. Meßergebnisse und Diskussion

5.1 Einfluß des Restgases auf die Desorption

5.1.1 Druckvariation in Stickstoffatmosphäre

Im vorigen Abschnitt wurde gezeigt, daß die theoretische Simulation der Wasserstoffdesorption gemäß (4.25) eine starke Abnahme der Desorptionsstromdichte J_V mit steigendem Restgasdruck erwarten läßt. In einem Experiment wurde daher der Druck durch Einlassen von Stickstoff in die Meßkammer gezielt verändert. Fig. 5.1 zeigt das Ergebnis dieser Messung. Aufgetragen ist das Verhältnis der Desorptionsstromdichte J_V zur Si-Stromdichte j in Abhängigkeit von der Deuteronenkonzentration in doppellogarithmischem Maßstab. Bei der Targettemperatur $T = 388 \text{ K}$ wurden Si-Ionen der Energie $E = 20 \text{ MeV}$ und mit der Stromdichte $j = 8,5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ verwendet. Der Druck wurde zwischen $4 \cdot 10^{-8} \text{ hPa} \leq p \leq 2 \cdot 10^{-5} \text{ hPa}$ variiert. Man er-

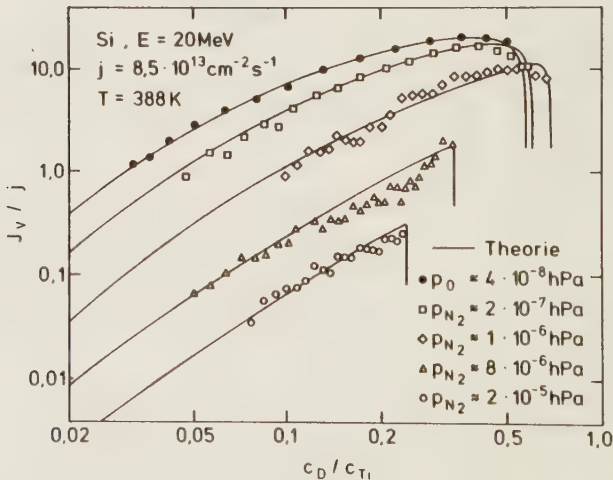


Fig. 5.1: Auf die Si-Stromdichte j normierte Desorptionsstromdichte J_V als Funktion der Deuteronenkonzentration im Titan für verschiedene Stickstoffdrücke in der Meßkammer

kennt eine starke Abnahme des Desorptionsverhältnisses mit steigendem Gasdruck bei gleicher Deuteronenkonzentration. Die Theoriekurven wurden gemäß Gl. (4.25) mit einem einzigen Parametersatz bezüglich der maximalen Desorptionsstromdichten $k_2' = 28 \text{ D}_2/\text{Si}$, $k_{2,G}' = 7 \text{ Gas-Moleküle/Si}$ und des Ratenverhältnisses $k_4/k_3 = 7$ sowie individueller effektiver Gasstromdichten $\gamma \cdot \Phi_G$ angepaßt. Es resultiert eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment, wie Fig. 5.1 erkennen läßt.

Nach der kinetischen Gastheorie (s. z. B. /Ro73/) stellt sich der Zusammenhang zwischen Gasmolekülstromdichte Φ' und Partialdruck p wie folgt dar:

$$\Phi' = p \cdot \sqrt{N_A} / (2 \cdot \pi \cdot M \cdot k \cdot T) \quad (5.1)$$

mit N_A : Avogadro-Konstante, M : molare Masse, k : Boltzmannkonstante und T : Gastemperatur.

Die dem Experiment angepaßten effektiven Stickstoffstromdichten $\gamma \cdot \Phi_G$ wurden auf die theoretischen Stromdichten Φ' normiert, und man erhält somit den Haftkoeffizienten γ . Die-

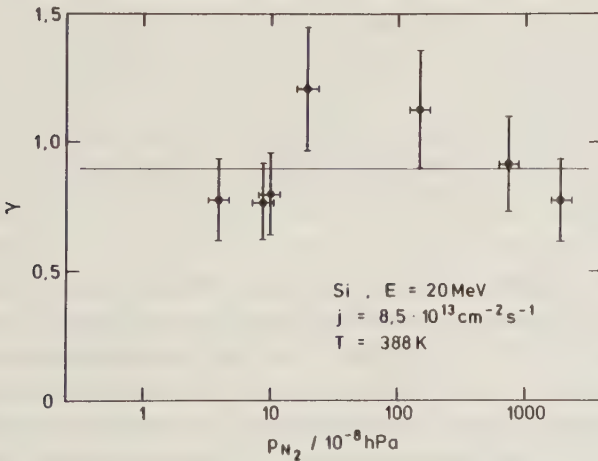


Fig. 5.2: Stickstoff-Haftkoeffizient γ als Funktion des Stickstoffdruckes. Die durchgezogene Linie ist eine Ausgleichsgerade für konstantes γ .

ser ist in Fig. 5.2 in Abhängigkeit von dem Stickstoffdruck aufgetragen. Wegen der sehr großen Druckvariation wurde eine logarithmische Abszisse zur besseren Darstellung gewählt. Unter der Annahme eines konstanten Haftkoeffizienten ergibt sich ein mittlerer Wert von $\gamma = 0,9$ für Stickstoff. Da der Gesamtbedeckungsgrad der Ti-Oberfläche durch Gl. (4.25) schon entsprechend berücksichtigt wurde, gilt dieser Wert für den Haftkoeffizienten auf reinem Titan. Allein unter Berücksichtigung des Fehlers der Absolutdruckmessung (Faktor 3) ist die Übereinstimmung mit Literaturdaten $\gamma = 0,2 - 0,8$ /Ha76/ gut.

Die gute theoretische Anpassung an die Messungen (Fig. 5.1) mit einem konstanten Parametersatz k_2 , $k_{2,G}$ und k_4/k_3 sowie einem ebenfalls konstanten Haftkoeffizienten γ beweist die Richtigkeit des im vorigen Kapitel 4 entwickelten phänomenologischen Modells.

5.1.2 Haftkoeffizient der Restgasatmosphäre

In der Kammeratmosphäre treten bevorzugt H_2 , H_2O und N_2 auf (s. Abs. 2.2), wobei das Verhalten des Wasserstoffs näher zu untersuchen ist, weil bisher von einem vernachlässigbar kleinen Wasserstoffpartialdruck ($\Phi = 0$ in Abs. 4.1.1) ausgegangen wurde. Dabei ist zu beachten, daß nur das Produkt aus Haftkoeffizient und Gasstromdichte (sie liegt hier für H_2 , H_2O und N_2 in der Größenordnung $10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) $\gamma \cdot \Phi_G$ entscheidend ist.

Die Haftkoeffizienten von H_2O , N_2 und O_2 auf reinem Titan sind im Rahmen der Fehler gleich und liegen in der Größenordnung $\gamma = 0,6 - 0,8$ /Ha76/. Bei der Chemisorption des H_2O können die H-Atome rekombinieren und desorbieren /Uc83b/. Bei der Anwesenheit von Sauerstoff im Titan ergibt sich der Haftkoeffizient von Wasserstoff zu $\gamma_{H_2} \leq 0,01$ /Uc83a/. Da hier immer Sauerstoff im Target ist (Abs. 3.2.2), kann der Einfluß des Wasserstoffs der Restgasatmosphäre auf das Ausgasverhalten aufgrund des niedrigen Haftkoeffizienten vernachlässigt

werden, weil $\gamma \cdot \Phi_G$ der Sauerstoffanteile des Wassers und des Stickstoffs viel größer ist. Sauerstoff und Stickstoff werden im folgenden einfach als Gas bezeichnet.

Da die Haftkoeffizienten der Gase eng beieinander liegen, wird für die weiteren Auswertungen der für unsere experimentellen Bedingungen gemessene Haftkoeffizient des vorigen Abschnitts eingesetzt und die Gasstromdichte Φ_G aus dem gemessenen Druck mit Gl. (5.1) berechnet. Somit ist jetzt $\gamma \cdot \Phi_G$ für diese Gase aus Meßgrößen berechenbar.

5.2 Variation der Kammeratmosphäre

5.2.1 Reversible Blockade der Wasserstoffdesorption

In Abs. 5.1.1 wurde der Einfluß des Stickstoffdruckes in der Meßkammer auf das Freisetzen des Wasserstoffs aus dem Titan beschrieben, und in Abs. 5.1.2 wurde die Äquivalenz von N_2 , O_2 und H_2O diskutiert. Als nächstes soll untersucht werden, ob andere Gase einen ähnlichen Effekt zeigen.

Zur Beantwortung dieser Frage wurde in verschiedenen Meßzyklen das Freisetzen zunächst bei Minimaldruck von ca. $6 \cdot 10^{-8}$ hPa und dann mit H_2 , N_2 , He und Ar angereicherter Kammeratmosphäre unter Schwerionenbeschuß gemessen. Nachdem die Tendenz des Desorptionsverhaltens unter dem Gaseinfluß deutlich genug zu erkennen war, wurde das Gas wieder bis auf Minimaldruck abgepumpt und das weitere Freisetzen gemessen. Die Ergebnisse dazu sind in Fig. 5.3 dargestellt. Aufgetragen ist dort die Deuteronenkonzentration im Titan in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit unter Beschuß mit Si-Ionen der Energie $E = 20$ MeV und mit der Stromdichte $j = 1,7 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ (bei Kurve (c) nahm j anfangs ab) bei der Targettemperatur $T = 326$ K für verschiedene Gase und Drücke. Die Kurven (c), (d) und (e) sind der Übersichtlichkeit wegen in der Konzentration um die angegebenen Beträge verschoben. Die Pfeile deuten jeweils Beginn und Ende des Gaseinlasses an. Die durch-

gezogenen Linien sind die für die jeweiligen Bereich angepaßten Theoriekurven.

Die Kurve (a) bei Minimaldruck wurde gemäß (4.25) angepaßt. Mit demselben Parametersatz können die Kurven (b), (d) und (e) bis zum Beginn des Gaseinlasses gut wiedergegeben werden. Während des Gaseinlasses findet kein meßbares Freisetzen statt, außer in Kurve (b), wo es nur stark reduziert ist. Dort war mit Wasserstoff dasselbe Isotop gewählt worden, das auch freigesetzt wurde. Eine Blockade der Wasserstoffdesorption ist offenbar mit allen Gasen zu erreichen.

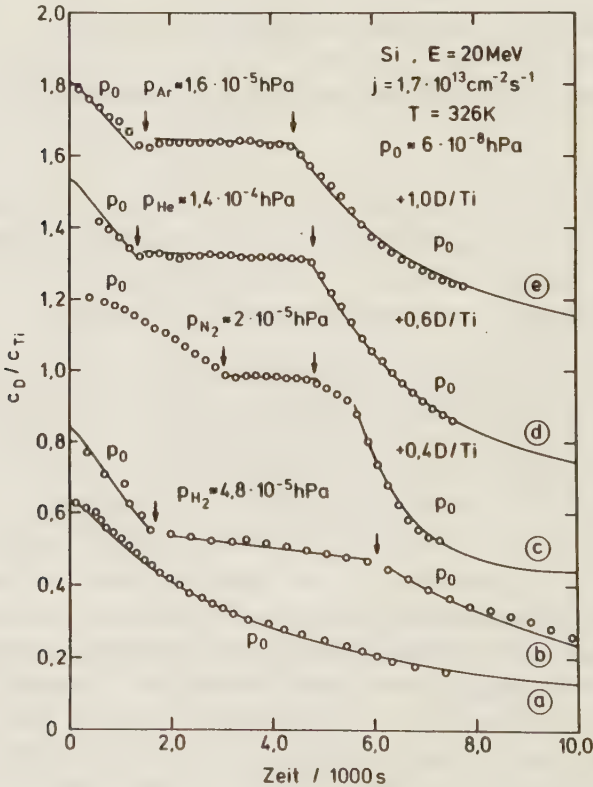


Fig. 5.3: Deuteronenkonzentration im Titan in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit für verschiedene Kammeratmosphären (Gas- und Druckvariation). Die durchgezogenen Linien sind theoretische Anpassungen.

Für die Berechnungen der Theoriekurven der Gaseinlaßphasen wurden die niedrigst möglichen Werte für $\gamma \cdot \Phi_G$ verwendet, die die Meßwerte noch gut wiedergeben. Da mit Gl. (5.1) Φ_G für die verschiedenen Gase berechnet werden kann, erhält man somit Minimalwerte für die Haftkoeffizienten γ , die in Tabelle 5.1 zusammengestellt sind.

Gas	H ₂	He	Ar	N ₂
Haftkoeffizient γ	0,01	> 0,005	> 0,13	0,9

Tabelle 5.1: Resultierende Haftkoeffizienten verschiedener Gase auf Titan

Der Wert für Stickstoff wurde aus Abs. 5.1.1 übernommen. Unter Berücksichtigung der Sauerstoffanteile des Titans stimmt γ_{H_2} sehr gut mit Literaturwerten /Uc83a/ überein. Für He und Ar² werden Werte von $\gamma < 0,0005$ in der Literatur /Ha76/ angegeben, allerdings ohne die Reinheit des Titans näher zu spezifizieren.

Nach dem Abpumpen des eingelassenen Gases nimmt die Deuteronenkonzentration wieder ab. Außer für den Fall des Wasserstoffeinlasses (Kurve (b)) ergibt die Anpassung ein höheres Ratenverhältnis k_4/k_3 als zu Beginn der Messung. Die Ursache für diesen Effekt konnte nicht eindeutig geklärt werden. Vielleicht sind ins Target gelangte Gasatome dafür verantwortlich, dann nämlich wäre kein Effekt für Wasserstoffgas zu erwarten, weil Wasserstoff ohnehin schon in hoher Konzentration im Target vorliegt. Die Fremdatomanalyse nach Beendigung der Messung mit Stickstoff (Kurve (c)) zeigt tatsächlich eine Zunahme der Stickstoffmenge im Target um $4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ ($\hat{=}$ 25% Erhöhung gegenüber der Anfangsbelegung (Abs. 3.2.2)). Als Ursache darf Recoil-Implantation vermutet werden; eine quantitative Abschätzung ist allerdings schwierig. Teilchenbelegungen von He und Ar können mit dem Kernreaktionsverfahren hier nicht gemessen werden.

5.2.2 Irreversible Blockade der Wasserstoffdesorption

In diesem Abschnitt soll gezeigt werden, welchen Einfluß Kohlenwasserstoffe $(CH_2)_n$ in der Kammeratmosphäre auf die Wasserstoffdesorption haben. Zu diesem Zweck wurde zunächst das Desorptionsexperiment bei Minimaldruck gestartet; kurz danach wurden Kohlenwasserstoffe aus Vakuumpumpenöl in die Meßkammer eingelassen. Das Ergebnis dieser Messung ist in Fig. 5.4 wiedergegeben. Dort ist in Teil (a) die Deuteronen- (linke Skala) und Protonenkonzentration (rechte Skala) im Ti-

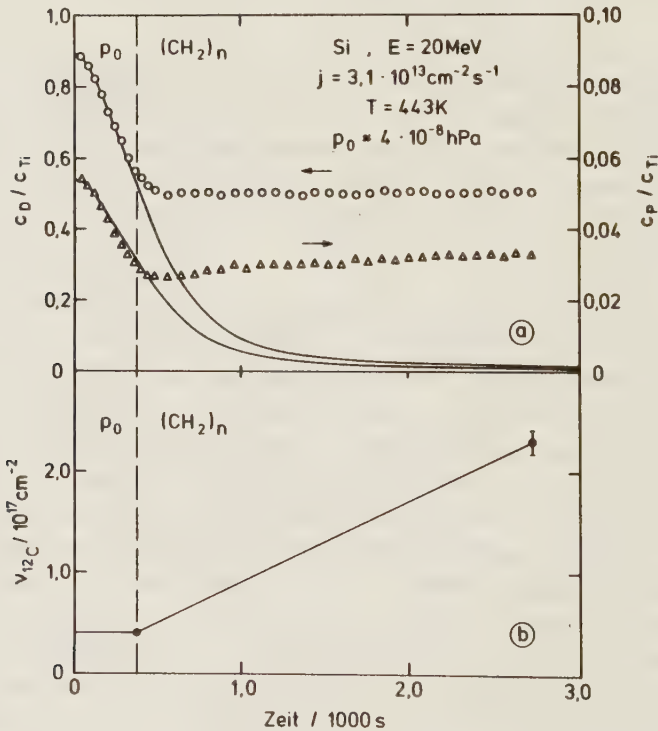


Fig. 5.4: (a): Wasserstoffkonzentration als Funktion der Bestrahlungszeit unter Ausgangsbedingungen p_0 und unter Kohlenwasserstoffatmosphäre $(CH_2)_n$; (b): interpolierter Verlauf der Kohlenstoffzunahme unter $(CH_2)_n$ -Atmosphäre

tan in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit aufgetragen. Bei Minimaldruck zu Beginn findet in Übereinstimmung mit der Theorie (durchgezogene Linie) normales Freisetzen statt, das innerhalb von ca. 120 Sekunden nach dem $(\text{CH}_2)_n$ -Einlaß (senkrechte gestrichelte Linie) aufhört. Die Protonenkonzentration nimmt danach sogar zu. In Teil (b) von Fig. 5.4 ist die Entwicklung der Kohlenstoffmenge auf dem Target dargestellt. Gemessen wurden Anfangs- und Endwert der Kohlenstoffbelegung. Wird die Kammeratmosphäre wieder auf Minimaldruck reduziert, bleiben alle drei Konzentrationen (P, D, C) unter fortgesetztem Ionenbeschuß konstant. Die Blockade der Wasserstoffdesorption ist also irreversibel.

Die aus der Kammeratmosphäre auf das Target gelangten Kohlenwasserstoffe werden durch den Ionenstrahl dort polymerisiert und bilden eine stabile, mit der Dosis linear wachsende Schicht, wie in früheren Untersuchungen ermittelt werden konnte /Sc80b, Mö81/. In diese Polymerisatschicht wird auch Protium eingebaut, wodurch sich dessen Anstieg in Fig. 5.4a erklärt. Ein Vergleich zwischen dem Kohlenstoff- und dem Protiumaufbau ergibt ein Verhältnis $\text{C}/\text{H} \approx 70$, so daß von einer fast reinen Kohlenstoffschicht ausgegangen werden kann, zumal auch kein Sauerstoff- oder Stickstoffaufbau gemessen wurde. Bisher konnten keine Hinweise bezüglich der Zusammensetzung so produzierter Polymerisatschichten in der Literatur gefunden werden.

Während der oben erwähnten 120 Sekunden bis zum Stillstand des Freisetzens wird eine Kohlenstoffbedeckung von ca. 10^{16} C-Atome cm^{-2} aufgebaut. Sie entspricht etwa 7 Monolagen. Da Wasserstoff in stöchiometrischem TiC nicht löslich ist /Go64/, könnte man aus der Blockade der Wasserstoffdesorption folgern, daß TiC schon bei ca. 7 Monolagen Kohlenstoff in ausreichender Menge gebildet wird. Da die Wasserstoffdiffusion in Kohlenstoff bei der Temperatur $T = 443$ K noch vernachlässigbar klein ist /Er76/, könnte vielleicht auch die dünne reine Kohlenstoffschicht das Target versiegeln. Welcher Effekt für die Blockade entscheidend ist, kann hier nicht ge-

klärt werden. Auch der Schwerionenbeschuß versetzt den Wasserstoff nicht in die Lage, die hier aufgebaute irreversible Schicht zu durchdringen.

5.3 Variation der Targettemperatur

Nachdem in den vorigen Abschnitten gezeigt werden konnte, daß das in Kapitel 4 entwickelte Gleichungssystem (4.25) die Messungen korrekt beschreibt und daß die Einflüsse der Kammeratmosphäre gut bekannt sind, werden im folgenden die Abhängigkeiten der maximalen Desorptionsstromdichten k_2 und $k_{2,G}$ sowie des Ratenverhältnisses k_4/k_3 von der Targettemperatur und den Ionenstrahlparametern bestimmt.

Im untersuchten Temperaturbereich zwischen $T_{\min} = 140$ K und $T_{\max} = 500$ K konnte immer eine Abnahme der Wasserstoffkonzentration aufgrund des Schwerionenbeschusses beobachtet werden. Fig. 5.5 zeigt eine typische Serie von Meßkurven für verschiedene Targettemperaturen. Aufgetragen ist das Verhältnis der Desorptionsstromdichte J_V zur Si-Stromdichte j in Abhängigkeit von der Deuteronenkonzentration im Titan für Si-Ionen der Energie $E = 20$ MeV mit der Stromdichte $j = 3,1 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ bei dem Druck $p \approx 4 \cdot 10^{-8}$ hPa. Man erkennt, daß die Desorptionsstromdichte bei gleicher Konzentration um so größer ist je höher die Temperatur ist.

Die Theorieanpassungen (durchgezogene Linien) wurden mit Gl. (4.25) durchgeführt und geben die Messungen gut wieder. Als Ergebnis resultiert, daß die maximalen Desorptionsstromdichten k_2 und $k_{2,G}$ unabhängig von der Targettemperatur konstant sind, wohingegen das Ratenverhältnis k_4/k_3 mit zunehmender Temperatur steigt. Die angepaßten Werte von k_4/k_3 sind mit den Ergebnissen vieler anderer Meßreihen gemittelt worden. Diese Mittelwerte sind in einem Arrhenius-Diagramm in Fig. 5.6 dargestellt. Die eingezeichnete Ausgleichsgerade wurde unter Berücksichtigung der Fehler der einzelnen Punkte berechnet. Das Ratenverhältnis ergibt sich zu:

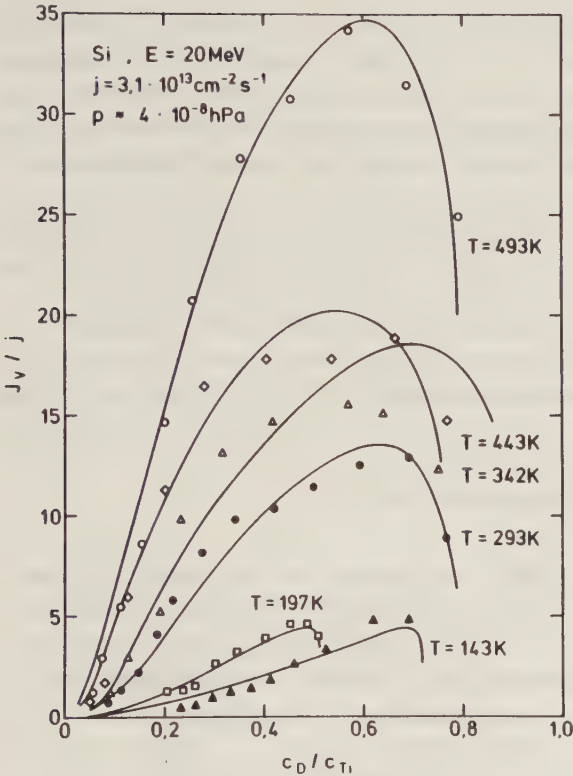
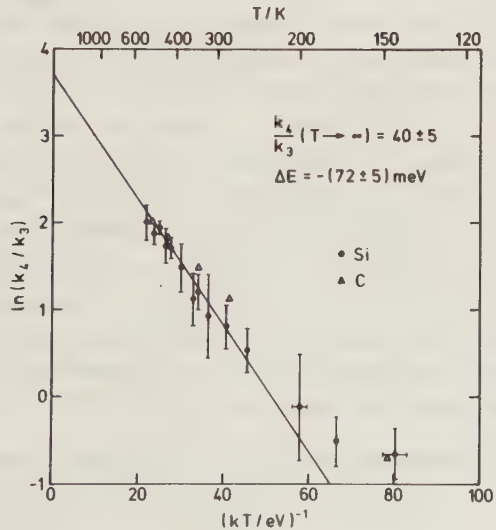


Fig. 5.5:

Auf die Si-Stromdichte j normierte Desorptionsstromdichte J_V in Abhängigkeit von der Deuteronenkonzentration im Titan für verschiedene Targettemperaturen. Die Linien sind theoretische Anpassungen.

Fig. 5.6:

Arrhenius-Darstellung der Ratenverhältnisse k_4/k_3 für Si- und C-Ionen als Projektile



$$k_4/k_3 = 40 \cdot \exp (-0,072 \text{ eV} / kT) \quad (5.2)$$

Die Übereinstimmung mit den Meßpunkten ist gut. Lediglich bei tiefen Temperaturen ($T < 250 \text{ K}$) sind die gemessenen Ratenverhältnisse k_4/k_3 größer als Gl. (5.2) sie liefert.

Die Dreiecke in Fig. 5.6 symbolisieren eine Messung mit ^{12}C als Einschüßionen. Im Rahmen der Fehler stimmen die Ratenverhältnisse $k_4/k_3(\text{C})$ und $k_4/k_3(\text{Si})$ sehr gut überein, so daß das Verhältnis k_4/k_3 unabhängig von der Ionensorte und der -energie zu sein scheint. Dieser Effekt wird in Abs. 5.5 und 5.6 noch näher untersucht werden.

5.4 Variation der Ionenstromdichte

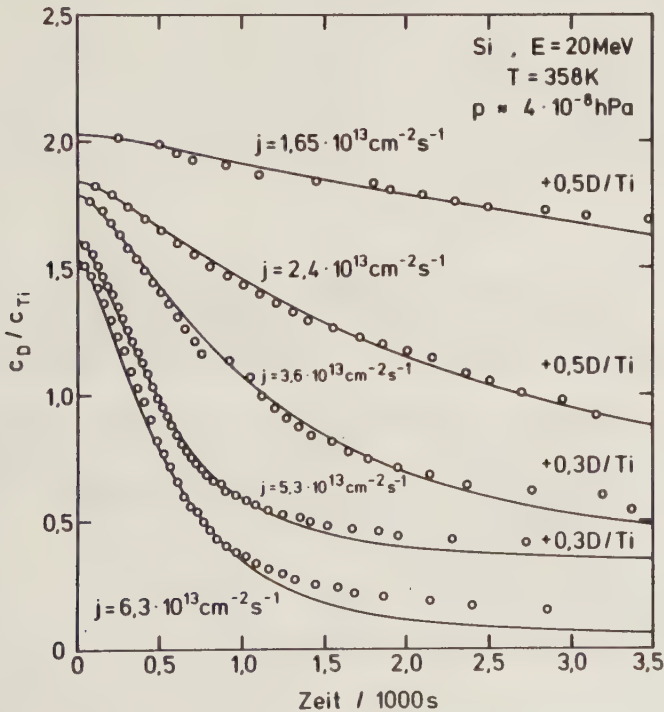
In den vorigen Abschnitten wurden die Einflüsse der Kammeratmosphäre und der Targettemperatur auf die Wasserstoffdesorption beschrieben. Der verbleibende wichtige Variationsbereich ist der der Ionenstrahlparameter. Im folgenden wird nun die Bedeutung der Ionenstromdichte eingehender untersucht.

Zu diesem Zweck wurde in einem Experiment die Abnahme der Wasserstoffkonzentration durch den Schwerionenbeschuß mit verschiedenen Stromdichten beobachtet. Das Ergebnis ist in Fig. 5.7 dargestellt. Dort ist die Deuteronenkonzentration im Titan in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit für Stromdichten zwischen $j = 1,65 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ und $j = 6,3 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ aufgetragen. Verwendet wurden Si-Ionen der Energie $E = 20 \text{ MeV}$ bei der Targettemperatur $T = 358 \text{ K}$ und dem Druck $p \approx 4 \cdot 10^{-8} \text{ hPa}$. Der Übersichtlichkeit wegen sind die Kurven um die angegebenen Konzentrationsbeträge verschoben. Man erkennt, daß die Konzentrationsabnahme zeitlich um so schneller geschieht je höher die Stromdichte ist.

Die maximalen Desorptionsstromdichten k_2 , $k_{2,G}$ und das Ratenverhältnis k_4/k_3 wurden mit Gl. (4.25) an die Meßkurven

angepaßt. Es resultieren die als durchgezogene Linien eingezeichneten Theoriekurven, die eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Kurven aufweisen. Die Abweichung bei niedrigen Konzentrationen kann als geringer Untergrundsfehler interpretiert werden. Es zeigt sich, daß das Ratenverhältnis k_4/k_3 unabhängig von der Stromdichte einen konstanten Wert annimmt, wohingegen die maximalen Desorptionsstromdichten k_2 und $k_{2,G}$ mit der Si-Stromdichte ansteigen.

In Fig. 5.8 sind die Werte für die gefundenen maximalen Desorptionsstromdichten $k_{2,G}$ (linke Skala) und k_2 (rechte Skala) in Abhängigkeit von der Ionenstromdichte aufgetragen, wobei außer den Werten der Messungen der Fig. 5.7 noch zu-



• Fig. 5.7: Deuteronenkonzentration im Titan in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit für verschiedene Si-Stromdichten. Die Linien sind theoretische Anpassungen.

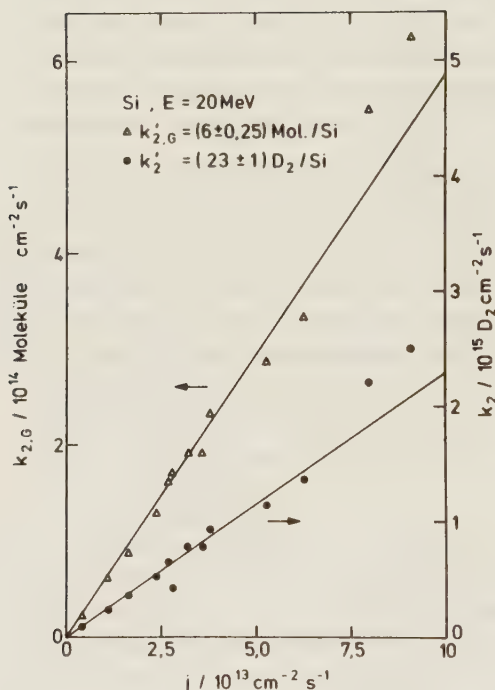


Fig. 5.8:

Maximale Desorptionsstromdichten als Funktion der Si-Stromdichte (Gasmoleküle: linke Skala; Deuterium: rechte Skala)

sätzliche Daten anderer Meßreihen eingezeichnet sind. Es resultiert eine jeweils lineare Abhängigkeit der maximalen Desorptionsstromdichten k_2 und $k_{2,G}$ von der Einschußstromdichte.

Das Verhältnis zwischen k_2 und $k_{2,G}$ ist demzufolge unabhängig von der Stromdichte j konstant $k_2/k_{2,G} \approx 4$, und es ergibt sich als Mittelwert für k'_2 und $k'_{2,G}$ als Quotient aus k_2 bzw. $k_{2,G}$ und der Stromdichte j :

$$k'_2 = k_2/j = (23 \pm 1) \text{ D}_2/\text{Si}$$

$$k'_{2,G} = k_{2,G}/j = (6 \pm 0,25) \text{ Gas-Moleküle/Si}$$

5.5 Variation der Ionenenergie

Die in den vorigen Abschnitten beschriebenen Variationen

von Ionenstromdichte und Targettemperatur dienten dazu, Hinweise auf den physikalischen Mechanismus der Ionenstrahlinduzierten Wasserstoffdesorption aus Titan zu erhalten. Weitere Aufschlüsse kann die Untersuchung des Energieübertrags der Einschüßionen auf die Wasserstoffatome liefern. Um darüber Informationen zu gewinnen, ist es sinnvoll, die Einschüßenergie der Schwerionen zu verändern und den Einfluß auf das Freisetzverhalten zu beobachten. Denn die für die Desorption benötigte Energie kann nur aus dem direkten oder indirekten Energieübertrag der Einschüßionen auf die Deuteronen stammen.

Daher wurde in einem Experiment die Einschüßenergie der Si-Ionen zwischen $4 \text{ MeV} \leq E \leq 20 \text{ MeV}$ variiert. Das Ergebnis der Messung ist in Fig. 5.9 dargestellt. Aufgetragen ist das Verhältnis der Desorptionsstromdichte J_V zur Si-Stromdichte j in Abhängigkeit von der Deuteronenkonzentration im Titan für drei verschiedene Ionenenergien bei der Targettemperatur von $T = 350 \text{ K}$ und dem Druck $p \approx 2,5 \cdot 10^{-7} \text{ hPa}$. Man erkennt, daß das Desorptionsverhältnis J_V/j bei gleicher Konzentration mit der Energie der Einschüßionen zunimmt.

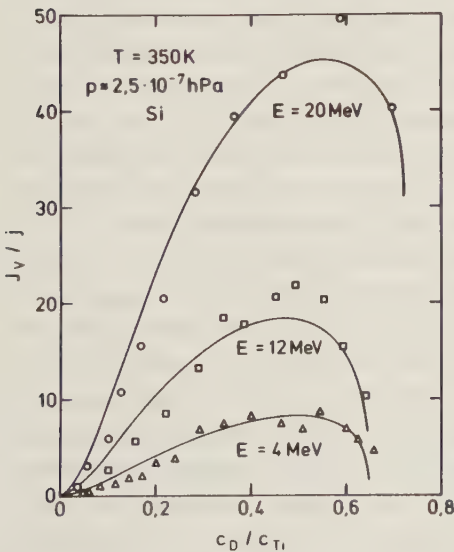


Fig. 5.9:

Auf die Si-Stromdichte j normierte Desorptionsstromdichte J_V als Funktion der Deuteronenkonzentration im Titan für verschiedene Einschüßenergien. Die Linien sind theoretische Anpassungen.

Die Theorie wurde wiederum gemäß Gl. (4.25) an die Meßwerte angepaßt und als durchgezogene Linien eingezeichnet. Es resultiert eine gute Übereinstimmung mit den Meßpunkten. Das Ratenverhältnis k_4/k_3 ergab sich als konstant für alle drei Messungen, wodurch die Unabhängigkeit des Verhältnisses k_4/k_3 von der Einschußenergie bei dieser Targettemperatur dokumentiert wird. Die maximalen Desorptionsstromdichten k_2 und $k_{2,G}$ bilden dasselbe konstante Verhältnis $k_2/k_{2,G} \approx 4$ wie in Abs. 5.4. Die auf die Einschußstromdichte normierten maximalen Desorptionsstromdichten k'_2 und $k'_{2,G}$ steigen mit größer werdender Ionenenergie.

5.6 Variation der Einschüßionen

Wechselwirkungsmechanismen zwischen den Einschüßionen und den Wasserstoffatomen können nicht nur durch Variation der Einschußenergie ermittelt werden, sondern auch eine Variation der Ionensorte kann entsprechende Belege liefern.

Dazu wurden ^{12}C ($E = 6 \text{ MeV}$), ^{16}O ($E = 8 \text{ MeV}$) und ^{28}Si ($E = 12 \text{ MeV}$) als Einschüßionen gewählt. Die verschiedenen Einschußenergien bewirken gemäß Gl. (3.1) fast den gleichen Energieübertrag auf die Deuteronen bei der elastischen Streuung. Das Ergebnis dieser Messung ist in Fig. 5.10 dargestellt. Aufgetragen ist das Verhältnis der Desorptionsstromdichte J_V zur Stromdichte j in Abhängigkeit von der Deuteronenkonzentration im Titan für die verschiedenen Ionensorten bei der Temperatur $T = 434 \text{ K}$ und dem Druck $p \approx 2,6 \cdot 10^{-7} \text{ hPa}$. Wegen der besseren Übersichtlichkeit wurde eine logarithmische Ordinate gewählt. Es zeigt sich, daß das Desorptionsverhältnis J_V/j stark mit der Masse der Ionen zunimmt. Die durchgezogenen Linien sind wieder theoretische Anpassungen gemäß Gl. (4.25) in guter Übereinstimmung mit dem Experiment, wobei auch hier das Ratenverhältnis k_4/k_3 konstant und damit unabhängig von der Ionensorte ist. Dagegen steigen die maximalen Desorptionsstromdichten k_2 und $k_{2,G}$ mit der Ionenmasse bzw. Kernladungszahl an.

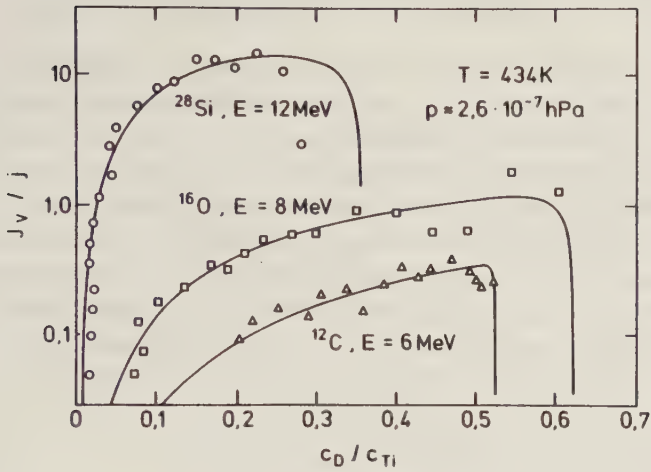


Fig. 5.10: Auf die Einschüßionenstromdichte j normierte Desorptionsstromdichte J_v in Abhängigkeit von der Deuteronenkonzentration im Titan für verschiedene Ionensorten. Die Linien sind theoretische Anpassungen.

6. Diskussion der Ionenstrahlinduzierten Desorption

Die Ionenstrahlinduzierte Desorption von Wasserstoff aus Titan ist als Zusammenspiel mehrerer physikalischer Einzelprozesse zu verstehen. Ausgehend von den in den vorigen Kapiteln dargestellten Untersuchungsergebnissen und der entwickelten Theorie, sollen im folgenden diese Einzelvorgänge diskutiert werden. Dabei ist eine Aufteilung in 4 Bereiche möglich: Bewegung des Wasserstoffs im Titanvolumen, Übergang an die Oberfläche und zurück, Desorption von der Oberfläche und Behinderung der Desorption durch die Restgasatmosphäre.

6.1 Diffusion im Titanvolumen

Die in Kapitel 5 dargestellten Meßergebnisse zeigen, daß der Ionenstrahl die Ratenkonstanten der Oberflächendesorption k_2 und $k_{2,G}$ beeinflusst, wohingegen die Targettemperatur keine Veränderung bewirkt. Dagegen hängt das Ratenverhältnis k_4/k_3 des Überganges der Wasserstoffatome aus dem Volumen an die Oberfläche und zurück oberhalb $T \approx 250$ K nur von der Temperatur ab. Daher ist es sinnvoll, das Verhalten des Wasserstoffs im Volumenbereich des Targets zunächst anhand des Phasendiagramms des Wasserstoff-Titan Systems (Fig. 3.6) zu interpretieren.

Das Phasendiagramm zeigt, daß bei den hier vorherrschenden Temperaturen bis 500 K und Konzentrationen zwischen 0,1 D/Ti und 1,5 D/Ti der Wasserstoff in der ($\alpha+\gamma$)-Phase vorliegt. Dabei ist der Anteil der α -Phase sehr gering ($< 3\%$) und die Hydridphase dominiert. Der α -Wasserstoff ist in der Titanmatrix statistisch verteilt, dagegen bildet der γ -Wasserstoff ein kubisches Gitter im kfz-strukturierten Titan auf Tetraeder-Zwischengitterplätzen /St61/. Zur Veranschaulichung der Potentialverhältnisse dient das schematische Energiediagramm in Fig. 6.1. Für die Diffusion muß der Wasserstoff die Diffusionsenergien E_a^D bzw. E_γ^D der α - bzw. γ -Phase überwinden,

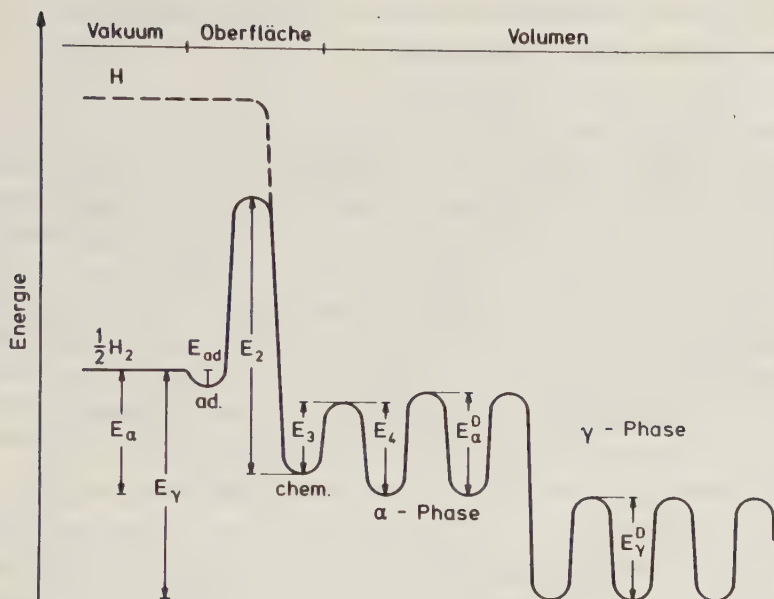


Fig. 6.1: Schematisches Energiediagramm für das Wasserstoff-Titan System

wobei der γ -Wasserstoff in den weitaus meisten Fällen auf den nächsten Tetraederplatz springt /Bu80/. Wie schon in Abs. 3.2.1 dargestellt, ist die Diffusionsgeschwindigkeit des Wasserstoffs in α - und γ -Phase fast gleich und so groß, daß während der Desorptionsmessungen oberhalb Raumtemperatur immer eine über die Tiefe gleichmäßige Konzentrationsverteilung in der Titanschicht herrscht.

Bei der niedrigen Temperatur von $T = 140$ K reicht die thermische Diffusion nicht zum Konzentrationsausgleich in der Titanschicht aus (vgl. Tab. 3.3). Da die Tiefenprofile aber auch bei $T = 140$ K eine tiefenunabhängige Konzentrationsabnahme zeigen, bedeutet dies, daß der Ionenstrahl dem Wasserstoff Energie zuführt, die in Diffusion umgesetzt wird. Spätestens ab Raumtemperatur dominiert jedoch der thermische Effekt. Die Abweichungen der Tieftemperaturpunkte ($T < 250$ K) von der Ausgleichsgeraden im Arrhenius-Diagramm der Fig. 5.6

können auf eine solche strahleninduzierte Diffusion zurückgeführt werden. Eine Alternative wäre die Existenz einer anderen Phase bei tiefen Temperaturen.

Für die erste Möglichkeit spricht jedoch eine Messung, bei der Deuteronen zunächst an Neon-Blasen in Nickel in einer Tiefe von $\Delta s = 300$ nm eingefangen waren. Thermisch werden die Deuteronen erst bei Temperaturen $T > 360$ K aus den Blasen freigesetzt /Mu84/. Beschuß mit Si-Ionen der Energie $E = 12$ MeV bei $T = 285$ K führte auch dort (d. h. tief im Nickel und nicht an der Oberfläche) zu einer Konzentrationsabnahme der Deuteronen. Dies ist durch Energieübertrag der Si-Ionen auf die Deuteronen, die dann die Potentialsenke der Ne-Blase überwinden können, verstehbar. Im Nickel verteilen sich die Deuteronen bei $T = 285$ K diffusiv, und damit nimmt die Konzentration ab.

Für die strahleninduzierte Diffusion genügt eine vorübergehende Absenkung des Potentialwalls (s. Fig. 6.1) durch z. B. Störung der Elektronenkonfiguration der TiH-Matrix durch ein vorbeifliegendes schweres Ion. In Dielektrika findet man Schädigungsspuren, die einzelnen hochenergetischen Ionen (MeV/u) zuzuordnen sind; die Versetzungen der Targetatome entstehen dabei durch langlebige ($\sim 10^{-12}$ s) Modifikationen des interatomaren Potentials durch "angeregte" Elektronen aufgrund der elektronischen Bremsung des Ions /To84/. In dicken Metalltargets wurde dies niemals beobachtet, weil aufgrund der anderen Elektronenstruktur die Relaxationszeiten zu kurz sind, um Versetzungen zu verursachen /To83/. Dies bedeutet die Unversehrtheit des Metallgitters. Die Wiederbeladbarkeit des Ti-Targets (Abs. 3.4) stimmt damit überein. Einen Einfluß auf das Diffusionsverhalten des Wasserstoffs im Metall kann man allerdings nicht ausschließen, da sowohl die zu überwindenden Energien geringer sind als auch immer einige freie Nachbarplätze zur Verfügung stehen.

6.2 Ratenverhältnis k_4/k_3

Das im vorigen Abschnitt Gesagte gilt nicht nur für die Diffusion innerhalb der Phasen im Titanvolumen, sondern auch für den Übergang von dem gelösten Zustand im Volumen in den chemisorbierten Zustand an der Oberfläche und zurück (vgl. Prozesse (3) und (4) in Fig. 4.1, entsprechend die Potentiale E_3 und E_4 in Fig. 6.1). Das in dieser Arbeit entwickelte Modell liefert das Verhältnis der Ratenkonstanten k_4/k_3 , ohne die Einzelgrößen näher spezifizieren zu können. In den vorigen Abschnitten konnte k_4/k_3 als stromdichte-, energie- und ionensortenunabhängig, aber einer Arrhenius-Bedingung für die Temperatur folgend, bestimmt werden.

Das Ratenverhältnis k_4/k_3 ist offensichtlich eine von Targetparametern abhängige Größe. Neben der Temperatur ist die Metallgitterstruktur dort ein wichtiger Parameter, so daß eine Störung der Gitterstruktur direkte Auswirkungen auf das Ratenverhältnis k_4/k_3 haben müßte. Eine solche Störung wurde in einem Experiment gezielt verursacht, indem Strahlenschäden in der Titanschicht durch Implantation von Deuteronen der Energie $E = 10$ keV produziert wurden. Durch Schrägstellung des Targets lag der Implantations- und damit auch Schädigungsschwerpunkt mitten in der Titanschicht. Das Ergebnis der Desorptionsmessung mit Si-Ionen bezüglich des Ratenverhältnisses k_4/k_3 ist in Fig. 6.2 als Arrhenius-Diagramm dargestellt. Die Kreise geben die Ergebnisse des Freisetzens der implantierten Deuteronen aus dem geschädigten Titan wieder. Zum Vergleich sind auch die Resultate mit der üblichen Beladungstechnik ohne Strahlenschäden aufgetragen (identisch mit Fig. 5.6). Die Schädigung der TiH-Matrix verursacht eine Erhöhung des Ratenverhältnisses k_4/k_3 um ca. einen Faktor 6 verglichen mit den Messungen ohne Strahlenschäden, wohingegen die maximalen Desorptionsstromdichten k_2 und $k_{2,G}$ nicht verändert werden. Dieses Ergebnis stimmt mit dem der verstärkten Diffusion nach Bestrahlungsexperimenten /Si78/ überein. Die Abhängigkeit des Ratenverhältnisses k_4/k_3 von Targetparametern in diesem Temperaturbereich wird damit bestätigt.

Die Messungen am ungeschädigten Titan ergeben:

$$k_4/k_3 = (40 \pm 5) \cdot \exp(-(72 \pm 5) \text{ meV} / kT) \quad (6.1)$$

für $T > 250 \text{ K}$, wohingegen sich bei Temperaturen $T < 140 \text{ K}$ ein konstanter Wert einzustellen scheint:

$$k_4/k_3 = 0,5 \pm 0,2 \quad (6.2)$$

mit einem Übergangsgebiet dazwischen. Bei den tiefen Tempera-

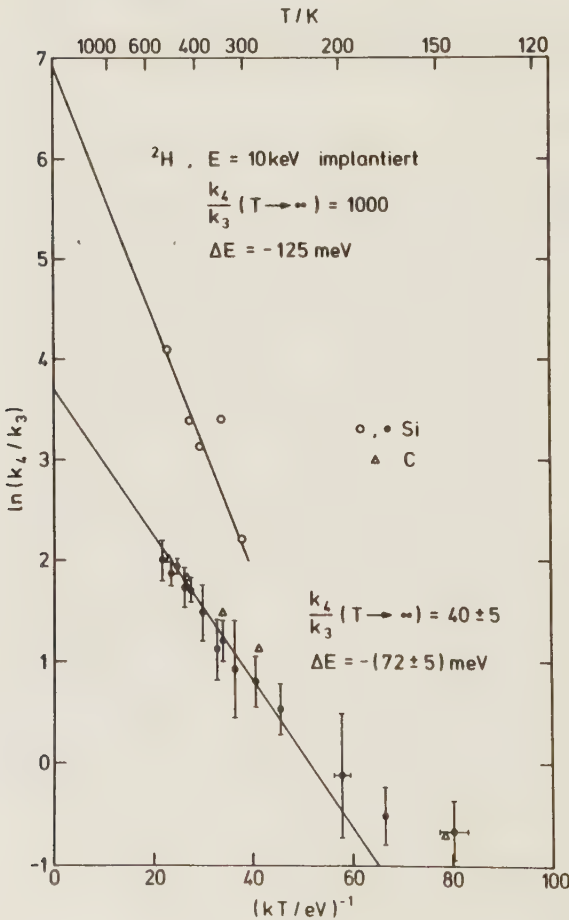


Fig. 6.2:
Arrhenius-Darstellung der Ratenverhältnisse k_4/k_3 für Titan mit (o) und ohne (•, Δ) Strahlenschädigung

turen sorgt der Ionenstrahl für ein höheres Ratenverhältnis als das Arrhenius-Gesetz es liefert. Das Ratenverhältnis k_4/k_3 kann durch Kombination der thermischen und der Ionenstrahlunterstützten Diffusion beschrieben werden durch:

$$\frac{k_4}{k_3} = \frac{f_4 \cdot \exp(-E_4 / kT) + \sigma_4 \cdot j}{f_3 \cdot \exp(-E_3 / kT) + \sigma_3 \cdot j} \cdot \frac{\lambda}{\lambda} \quad (6.3)$$

mit f_4, f_3 : Sprungfrequenz im Potential E_4 bzw. E_3 , λ : Sprungweite ($\approx$ Gitterkonstante) und σ_4, σ_3 : Wirkungsquerschnitt für einen Ionenstrahlinduzierten Sprung aus dem Potential E_4 bzw. E_3 . Über die Größen von f , E und σ können keine absoluten, sondern nur relative Aussagen gemacht werden.

Bei sehr niedrigen Temperaturen (z. B. $T = 140$ K) liefert Gl. (6.1) einen Wert, der klein gegen den Meßwert in Fig. 6.2 ist. Demnach sind die Exponentialterme in Gl. (6.3) vernachlässigbar klein, und nur das Verhältnis σ_4/σ_3 gibt das Verhältnis k_4/k_3 an. Aus Gl. (6.2) folgt dann $\sigma_4/\sigma_3 = 0,5 \pm 0,2$. Dieses Verhältnis liegt in der Nähe von 1, so daß höchstens ein geringer Unterschied in der Effektivität der Ionenstrahlinduzierten Anregung der chemisorbierten Atome relativ zu den im Titan gelösten besteht. Die Tendenz $\sigma_3 > \sigma_4$ könnte mit unterschiedlichen Relaxationszeiten der Anregung im Metallvolumen und der in der Oberflächenschicht in Analogie zur Diskussion im vorigen Abschnitt erklärt werden.

Bei höheren Temperaturen reduziert sich Gl. (6.3) auf:

$$k_4/k_3 = f_4/f_3 \cdot \exp(-(E_4 - E_3) / kT) \quad (6.4)$$

Der Vergleich von (6.4) mit (6.1) gibt: $f_4/f_3 = 40 \pm 5$ und $E_4 - E_3 = (72 \pm 5)$ meV. Die aus dem Arrhenius-Diagramm gewonnene Energie muß also als Energiedifferenz zwischen den Potentialen des gelösten und des chemisorbierten Zustandes angesehen werden (vgl. Fig. 6.1), was den recht kleinen Betrag verständlich macht. Beim Übergang vom Volumen an die Oberfläche ist der zu überwindende Potentialwall geringfügig höher

als umgekehrt. Der präexponentielle Faktor $f_4/f_3 = 40 \pm 5$ liegt deutlich über 1. Das damit in Verbindung zu bringende Verhältnis der Debye-Frequenzen des Volumens und der Oberfläche zeigt also höhere Frequenzwerte im Volumen als an der Oberfläche. Auch bei reinen Metallen sind die Debye-Frequenzen des Volumens höher als die der Oberfläche /Mo69/, was durch auf die Oberflächenatome geringer einwirkende repulsive Kräfte der Nachbaratome erklärt werden kann.

6.3 Hydridauflösung

Aufgrund der Arrhenius-Abhängigkeit von k_4/k_3 konnte oben gezeigt werden, daß thermische Übergänge der Wasserstoffatome vom Volumen in die Chemisorbatschicht und zurück gegenüber den strahleninduzierten oberhalb $T = 250$ K dominieren. Der Wasserstoff liegt in der $(\alpha+\gamma)$ -Phase vor mit der Löslichkeitsenthalpie $E_a = 0,5$ eV und der Hydrierungsenthalpie $E_\gamma = 1,2$ eV /Mu68/. Die Energien E_a und E_a^D der α -Phase erlauben thermische Übergänge in die Oberfläche in genügender Größenordnung, wohingegen das Lösen eines Atoms aus dem Hydrid wegen des hohen Wertes für E_γ bei Raumtemperatur mit viel zu geringer Rate geschieht, wie schon das Experiment und die theoretische Simulation des thermischen Ausgasens in Abs. 3.2.3 zeigten. Daraus folgt, daß die Wasserstoffatome aus der α -Phase an die Oberfläche gelangen. Diese Interpretation wird auch durch folgendes experimentelles Ergebnis unterstützt.

In Abs. 5.2.1 wurde die reversible Blockade der Wasserstoffdesorption durch Gaseinlaß in die Meßkammer beschrieben. Eines der untersuchten Gase war auch Protium H_2 . In Fig. 6.3 ist die Wasserstoffkonzentration im Titan ((a): Protonen und (b): Deuteronen) in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit aufgetragen, wobei die Deuteronenkurve identisch mit der aus Fig. 5.3 ist. Die Protonenkonzentration ist klein gegen die der Deuteronen, und wie schon in Abs. 3.3 gezeigt, bildet die Summe beider Konzentrationen den Ausgangswert für die theore-

tische Anpassung, die beide Wasserstoffabnahmen zu Beginn des Experiments sehr gut wiedergibt. Das Einlassen von H_2 -Gas (Beginn und Ende sind durch Pfeile gekennzeichnet) bewirkt dann eine lineare Zunahme der Protonenkonzentration, und die Deuteronenkonzentration nimmt nur noch langsam ab. Nach dem Ende des Gaseinlasses nimmt die Protonenkonzentration wieder ab, und die Deuteronen werden ebenfalls stärker desorbiert. Die Deuteronenabnahme folgt der Theorie, wohingegen die Protonenabnahme schneller ist. Das läßt darauf schließen, daß die Protonen bezüglich ihrer Gesamtkonzentration im Titan überproportional die α -Phase bevölkerten, in die sie zunächst gelöst werden, wenn sie durch die Oberfläche ins Titan gelang-

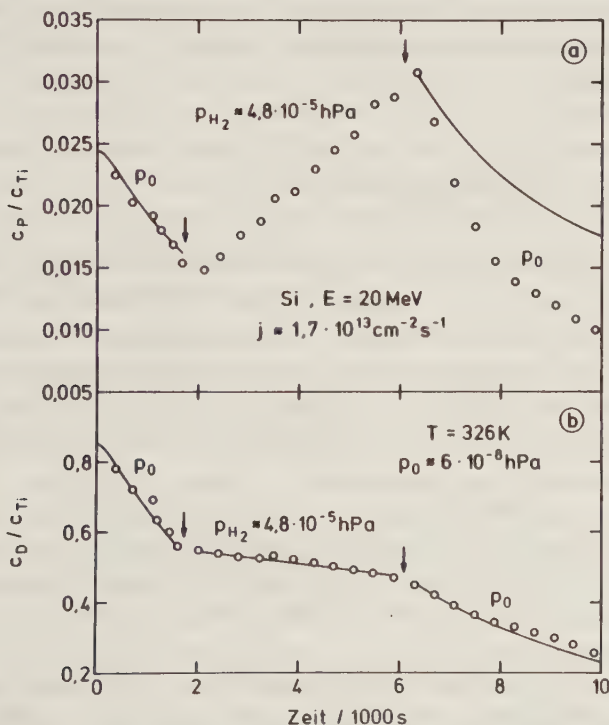


Fig. 6.3: Protonen- (a) und Deuteronenkonzentration (b) im Titan als Funktion der Bestrahlungszeit vor, während und nach Wasserstoffeinlaß in die Meßkammer

gen. Wenn das Ausgasen über die α -Phase geschieht, dann ist das schnellere Protonenfreisetzen verständlich. Aufgrund der viel höheren Deuteronenkonzentration ist das damit verbundene geringere Freisetzen der Deuteronen nicht beobachtbar.

Nun liegt aber die überwiegende Mehrzahl der Atome in der γ -Phase vor. Das Wasserstoff-Titan System ist jedoch bestrebt entsprechend der Temperatur und der Gesamtwasserstoffkonzentration, eine bestimmte Menge Wasserstoff in der α - und ebenso in der γ -Phase zu erhalten (s. Phasendiagramm (Fig. 3.6)). Wird der Anteil der α -Phase verringert (z. B. durch die Ionenstrahlinduzierte Desorption der an die Oberfläche aus der α -Phase gelangten Atome), so füllt die γ -Phase auf die dem Gesamtsystem entsprechende neue Konzentration nach. Auf diesem Weg ist das Freisetzen aus der γ -Phase über die α -Phase möglich.

6.4 Einfluß der Kammeratmosphäre

Die vollständige Sauerstoffbedeckung des Titans ohne Ionenbeschuß kann durch Vergleich der Bindungsenergien freier Titan-Gas-Moleküle verstanden werden. Diese Energien sind nicht mit den eigentlich nötigen Chemisorptionsenergien gleichzusetzen, können aber sicherlich Tendenzen aufzeigen. Literaturwerte /We78/ sind in Tabelle 6.1 zusammengestellt.

Molekül	H-Ti	N-Ti	O-Ti
Bindungsenergie / eV	1,6	4,6	6,6

Tabelle 6.1: Molekülbindungsenergien /We78/

Sauerstoff und Stickstoff werden stärker als Wasserstoff an das Titan gebunden, wodurch eine sehr viel längere Verweilzeit der Gasatome auf der Oberfläche resultiert. Dies wiederum erhöht das Verhältnis Gas/Wasserstoff drastisch. Darüberhinaus gibt es Literaturhinweise /Ou74/, daß sogar schon an Titan gebundener Stickstoff durch nachfolgenden Sauerstoff

teilweise ersetzt wird. Dies dürfte erst recht für Wasserstoff gelten. Die in Abs. 3.2.2 dargestellten Messungen, die ein Sauerstoff-Stickstoff-Verhältnis von $I(O_2)/I(N_2) \approx 10$ ergaben und eine Oberflächenbedeckung von ca. 13 Monolagen auswiesen, bestätigen die obige Argumentation.

Allgemein ist bekannt, daß Oberflächenoxidschichten die Adsorption und Desorption von Wasserstoff erschweren können /Sh74a/, was durch fehlende Plätze für die H_2 -Dissoziation erklärt werden kann /Ka79/, aber auch Edelgasbelegung reduziert die Desorptionsrate /Sc73/. Damit erscheint die Addition der Bedeckungsgrade des Wasserstoffs θ und des Sauerstoffs θ_G zum Gesamtbedeckungsgrad θ_T in der Theorie in Kapitel 4 gut begründet. In der Theorie wird auch verlangt, daß bei der Desorption von der Oberfläche kein nennenswerter Anteil von Gas-Wasserstoff-Molekülen gebildet wird, sondern die Moleküle sollen nur aus einem Element bestehen. Die Richtigkeit dieser Annahme konnte allerdings weder im Rahmen dieser Arbeit experimentell bewiesen noch durch Literaturhinweise belegt werden. Da dieser Ansatz aber der einfachste ist und die experimentellen Daten gut wiedergibt, scheint diese Annahme erfüllt zu sein.

Bei der Entwicklung der Gl. (4.25) ist der einfachste Ansatz für die Berücksichtigung der Gasatmosphäre verwendet worden, ohne alle möglichen Teilchenübergänge an der Oberfläche (s. Fig. 4.1) zu diskutieren. Unberücksichtigt blieben die Prozesse (3), (4) und (6), die alle unter Beteiligung des Titanvolumens ablaufen. Die Vernachlässigung dieser Übergänge kann dadurch begründet werden, daß Stickstoff und Sauerstoff aufgrund der niedrigen Diffusionskoeffizienten in α -Titan /An83/ im hier untersuchten Temperaturbereich unbeweglich sind. Auch der Schwerionenbeschuß verursacht keine Abnahme der Gasatommenge im Titan (Abs. 3.3). Dieses Ergebnis stimmt mit Anttila et al. /An83/ überein, die fanden, daß die Diffusion von Stickstoff in Titan durch Strahlenschäden energiereicher Protonen und Neon-Ionen nicht beeinflusst wird.

Da das thermische Verhalten des Wasserstoffs in den

Targets durch Literaturwerte für das Wasserstoff-Titan System gut beschrieben werden kann (Abs. 3.2.4), ist ein störender Einfluß durch den Sauerstoffanteil im Titan weder auf das Ratenverhältnis k_4/k_3 noch auf die maximalen Desorptionsstromdichten k_2 und $k_{2,G}$ zu erwarten.

6.5 Maximale Desorptionsstromdichten

Es ist Inhalt des Modells der Ionenstrahlinduzierten Desorption, daß der Ionenstrahl die Desorption des Sauerstoffs von der Oberfläche initiiert und dann ebenso auf den nachrückenden Wasserstoff wirkt. In Kapitel 5 konnte gezeigt werden, daß die entsprechenden maximalen Desorptionsstromdichten k_2 und $k_{2,G}$ relativ zueinander konstant, targettemperaturunabhängig und proportional zur Ionenstromdichte sind.

Die Chemisorptionsenergie (E_2 in Fig. 6.1) ist so hoch, daß im Temperaturbereich bis 500 K kein thermisches Ausgasen meßbar ist, wodurch die Temperaturunabhängigkeit von k_2 und $k_{2,G}$ erklärt werden kann. Die für die Desorption benötigte Energie stammt allein aus dem Ionenstrahl, wie die oben aufgeführten Abhängigkeiten beweisen.

6.5.1 Dominanz der elektronischen Bremsung

Aus der linearen Abhängigkeit der maximalen Desorptionsstromdichte k_2 von der Einschußionenstromdichte j (Abs. 5.4) kann man die einfache Gesetzmäßigkeit

$$k_2 = \nu_m \cdot \sigma_D \cdot j \quad (6.5)$$

ableiten mit σ_D : Desorptionsquerschnitt. Damit gibt die Normierung von k_2 auf die Stromdichte j sofort einen Wert proportional zum Desorptionsquerschnitt σ_D , für den wiederum eine Proportionalität zum Bremsquerschnitt der Ionen vermutet

werden darf, der ein Maß für die von den Ionen im Target abgegebene Energie ist. Diese Normierung ist auf alle Messungen mit Si-Ionen als Projektile angewendet worden, und die Verhältnisse k_2/j ($\sim \sigma_D$) sind in Fig. 6.4 in Abhängigkeit von der Einschußenergie der Si-Ionen aufgetragen. Die Werte aller Messungen wurden gemittelt und mit entsprechenden Fehlerbalken versehen. Man erkennt, daß die normierten maximalen Desorptionsstromdichten oberhalb $E = 6$ MeV fast unabhängig von der Einschußenergie der Si-Ionen sind.

Zum Vergleich sind zusätzlich die elektronischen Bremsquerschnitte $S_{el}/No70/$ für Si-Ionen in Ti, D, N und O als Linien eingezeichnet (rechte Skala). Die Punkte stimmen mit den elektronischen Bremsquerschnitten gut überein, so daß die elektronische Bremsung als der entscheidende Vorgang für den Energietransfer auf die Wasserstoffatome angesehen werden muß. Allerdings ist es nicht möglich, aus Fig. 6.4 abzulei-

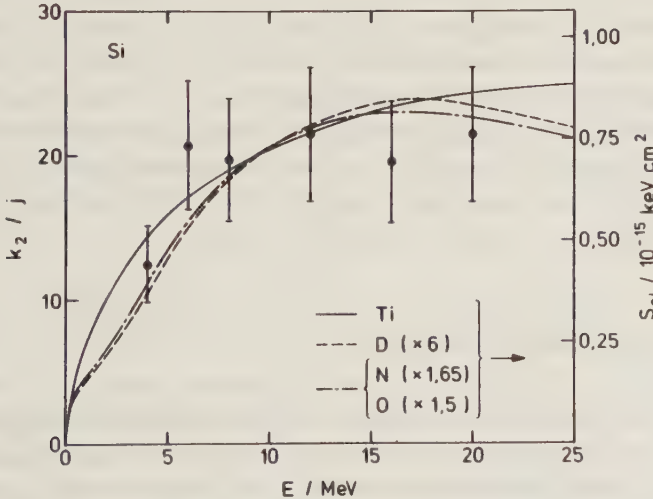


Fig. 6.4: Auf die Si-Stromdichte j normierte maximale Desorptionsstromdichte k_2 (Punkte, linke Skala) und der elektronische Bremsquerschnitt S_{el} von Si-Ionen in verschiedenen Materialien (Linien, rechte Skala) in Abhängigkeit von der Energie der Si-Ionen

ten, ob die Bremsung im Titan oder die in der Chemisorbat-schicht (D, N, O) auf dem Titan für die Desorption des Wasserstoffs bzw. der Gase verantwortlich ist, denn die vier Bremsquerschnittsverläufe sind zu ähnlich.

Die gemessene Abhängigkeit von der elektronischen Bremsung paßt gut in das Gesamtbild der Desorption und Zerstäubung unter Ionenbeschuß in der Literatur. Es ist bekannt, daß die Ionenstrahlinduzierte Desorption von Atomen und Molekülen aus Nicht-Metall-Festkörpern durch den elektronischen Energieverlust bestimmt wird /Dü80, Jo83a, Jo83b/, im Gegensatz zu der Emission von Atomen aus Metallen, bei der der nukleare Energieverlust entscheidend ist /Be81/. In jüngster Zeit haben Becker und Mitarbeiter /Be83/ gezeigt, daß die Emission von Nicht-Metall-Ionen von Metalloberflächen unter Schwerionenbeschuß (Ni, Xe, U; 1,4 MeV/u) ebenfalls der elektronischen Bremsung folgt.

Die durch den Schwerionenbeschuß hervorgerufene Störung der Elektronenkonfiguration (vgl. Abs. 6.1) versetzt die auf der Oberfläche chemisorbierten Atome in die Lage, zu rekombinieren und damit ein adsorbiertes Molekül zu bilden. Die Adsorptionsenergie (E_{ad} in Fig. 6.1) liegt in der Größenordnung weniger zehntel eV /Hö76/, so daß thermische Desorption die sofortige Folge ist. Die resultierenden D_2 -Moleküle konnten im Restgas der Kammer nachgewiesen werden (Abs. 3.3).

6.5.2 Desorptionsquerschnitte

Zur quantitativen Einordnung der Desorptionsquerschnitte σ_D und $\sigma_{D,G}$ müssen die maximalen Chemisorbatbedeckungen ν_m und $\nu_{m,G}$ bekannt sein (Gl. (6.5)). Der Wert für $\nu_{m,G}$ konnte durch Messung der Sauerstoffschicht auf dem Target vor Beginn der Bestrahlung zu ca. 13 Monolagen bestimmt werden. Da bei einer solchen Bedeckung keine Wasserstoffabnahme gemessen wird, wird die Wasserstoffbedeckung entsprechend niedriger erwartet. Untersuchungen des Haftkoeffizienten von Wasser-

stoff auf Titan /Uc83a/ haben eine Reduzierung um einen Faktor 100 bei ca. 3 Monolagen Wasserstoff im Vergleich zu Titan höchster Reinheit ergeben, so daß diese Dicke hier vernünftig erscheint. Zusammen ergibt sich

$$\nu_m \approx 4,5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2} \triangleq 3 \text{ Monolagen}$$

$$\nu_{m,G} \approx 2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2} \triangleq 13 \text{ Monolagen}$$

mit einer Unsicherheit von ca. $\pm 20\%$, die aus den von Probe zu Probe schwankenden Werten für $\nu_{m,G}$ resultiert.

Mit Durchschnittswerten für $k'_2 = 23 \text{ D}_2/\text{Si}$ (= 46 D/Si) und $k'_{2,G} = 6 \text{ Gas-Moleküle/Si}$ (= 12 Gas-Atome/Si) für $E_{\text{Si}} = 20 \text{ MeV}$ aus Abs. 5.4 folgen aus Gl. (6.5) Desorptionsquerschnitte von

$$\sigma_D \approx 1 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2$$

$$\sigma_{D,G} \approx 6 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$$

ebenfalls mit einer Unsicherheit von ca. $\pm 20\%$. Wie zu erwarten, liegen σ_D und $\sigma_{D,G}$ in der Größenordnung atomistischer Wirkungsquerschnitte. Der größere Desorptionsquerschnitt des chemisorbierten Wasserstoffs σ_D im Vergleich zu dem der Gasatome $\sigma_{D,G}$ ist durch die schwächere Bindung des Wasserstoffs an das Titan (vgl. Tab. 6.1) erklärbar.

6.5.3 Ionenabhängigkeit der Desorptionsquerschnitte

Bei rein elektronischer Bremsung müßten die Verhältnisse σ_D/S_{el} unabhängig von der Ionensorte sein, so wie sie es im vorigen Abschnitt von der Einschußenergie waren. Fig. 6.5 zeigt die Verhältnisse σ_D/S_{el} (willkürliche Einheiten) in Abhängigkeit von der Kernladungszahl Z der Einschußionen. Es sind logarithmische Skalen gewählt worden, um aus dem Verlauf der Meßpunkte auf ein eventuelles Potenzgesetz zwischen σ_D und Z schließen zu können. Die Punkte repräsentieren nicht nur die Ergebnisse der Messung aus Abs. 5.6, sondern bilden

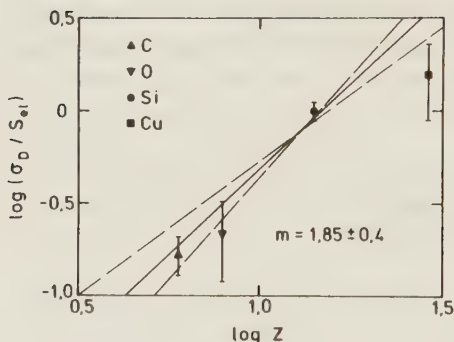


Fig. 6.5:

Logarithmus des auf den elektronischen Bremsquerschnitt S_{el} normierten Desorptionsquerschnitts σ_D in willkürlichen Einheiten als Funktion des Logarithmus der Kernladungszahl Z der Einschüßionen

die Mittelwerte aller durchgeführten Messungen. Es ergibt sich ein Anstieg des Verhältnisses σ_D/S_{el} mit der Kernladungszahl Z in dieser Darstellung. Die eingezeichnete Ausgleichsgerade wurde unter Berücksichtigung der Fehler der einzelnen Punkte berechnet. Da nur die Steigung m der Geraden interessiert, ist die willkürliche Einheit der Ordinate bedeutungslos. Es resultiert der Ausdruck

$$\sigma_D \sim S_{el} \cdot Z^{(1,85 \pm 0,4)} \quad (6.6),$$

der die Abhängigkeit von σ_D von der Kernladungszahl Z quantitativ mit entsprechendem Fehler, aber qualitativ in eindeutiger Tendenz beschreibt. Eine umfassende Erklärung für diese Proportionalität konnte nicht gefunden werden, jedoch ist es möglich, bestimmte Mechanismen auszuschließen und andere zu favorisieren.

Eine Interpretationsmöglichkeit wäre, daß die Elektronen, die mit dem Einschüßion auf das Target gelangen (Anzahl $\approx Z$) und dort teilweise abgestreift werden, ebenfalls zur Beweglichkeit der chemisorbierten Atome beitragen. Jedoch kann daraus eine maximal lineare Abhängigkeit von der Kernladungszahl resultieren, wenn nämlich Z Elektronen abgestreift würden. Diese Abhängigkeit stimmt nicht mit Gl. (6.6) überein. Eine Abschätzung ergibt, daß die abgestreiften Elektronen Energien in der Größenordnung 70 eV bis 350 eV

besitzen. In der Literatur findet man einige Messungen, die Desorptionsraten von Gasatomen von Metallträgern unter Elektronenbeschuß liefern. Young /Yo60/ ermittelte $10^{-5} \text{ O}^+/\text{e}^-$ für Elektronenbeschuß mit der Energie $E = 90 \text{ eV}$ und der Stromdichte $j = 6 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Menzel und Gomer /Me64/ arbeiteten mit Energien $E = 15 - 200 \text{ eV}$ und fanden Wirkungsquerschnitte in der Größenordnung $\sigma_e \approx 10^{-20} \text{ cm}^2$; ebenfalls einige Größenordnungen unter den in dieser Arbeit ermittelten. Damit ist eine Relevanz der Elektronen der Einschüßionen auszuschließen.

Die elektronische Bremsung der schweren Ionen hängt von deren effektiver Kernladungszahl ab (für eine zusammenfassende Darstellung s. z. B. /Le77/). Die effektive Ladung beim Durchflug durch Materie ändert sich durch Aufnahme oder Abgabe von Elektronen aus der oder an die Materie je nach Geschwindigkeit des Ions. Die effektive Ladung kann über einen großen Energiebereich berechnet werden /Bl71/. Vergleicht man die berechnete effektive Ladung der für diese Arbeit verwendeten Ionen mit dem Ladungszustand der Ionen vor dem Auftreffen auf das Target, so ergibt sich, daß zwischen 2 und 5 Elektronen im Target abgestreift werden, um auf den Betrag der effektiven Ladung zu gelangen. In der obersten Atomlage des Targets haben die Ionen also eine niedrigere Ladung als die Datentabellen für die elektronische Bremsung zugrundelegen, und die elektronische Energieabgabe ist verringert. Falls die Anregung in den obersten Monolagen entscheidend für die Desorptionsrate sein sollte, müßte dies zu einer Verringerung der Desorptionsrate führen. Der Energieverlust im hier untersuchten Energiebereich läßt sich nach einer Formel von Varelas und Biersack /Va70/ berechnen. Die Verhältnisse der mit effektiver Ladung und der mit nomineller Ladung gerechneten Energieverluste ergeben eine leicht ansteigende Tendenz mit der Kernladungszahl, die aber nicht ausreicht, den gemessenen Effekt allein zu erklären.

Der Wert des Exponenten in Gl. (6.6) liegt nahe bei 2. Im hier untersuchten Energiebereich hat der Verlauf des elek-

tronischen Bremsquerschnitts den Bereich der Proportionalität zu Z^2 (hohe Einschüßenergie) zwar noch nicht erreicht, aber eine Übereinstimmung der Meßergebnisse im Rahmen der Meßfehler mit der Formel

$$\sigma_D \sim S_{el}^2 \quad (6.7)$$

erscheint möglich. Daher ist in Fig. 6.6 der Desorptionsquerschnitt σ_D in Abhängigkeit von dem Quadrat des elektronischen Bremsquerschnitts S_{el}^2 aufgetragen. Ein linearer Zusammenhang ist aufgrund der Schwankungen und Fehler zwar nicht eindeutig, aber auch nicht auszuschließen.

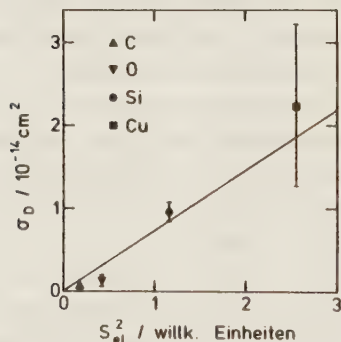


Fig. 6.6:
Desorptionsquerschnitt σ_D
in Abhängigkeit von dem
Quadrat des elektronischen
Bremsquerschnitts S_{el}^2 für
verschiedene Einschüßionen

Die quadratische Abhängigkeit $\sigma_D \sim S_{el}^2$ kann auch durch die Energievariation der Einschüßionen kontrolliert werden. In Fig. 6.7 ist der Desorptionsquerschnitt σ_D als Funktion der Einschüßenergie der Si-Ionen aufgetragen, ebenso zum Vergleich das Quadrat des mittleren elektronischen Bremsquerschnittsverlaufs aus Fig. 6.4 in willkürlichen Einheiten. Auch hier erscheint die Richtigkeit der Proportionalität der Gl. (6.7) nicht ausgeschlossen.

Eine Bestätigung der Möglichkeit der Abhängigkeit des Desorptionsquerschnitts von dem Quadrat des elektronischen Bremsquerschnitts findet man in der Literatur. Dort sind eine Reihe von Untersuchungen dokumentiert, die sich mit der Erosion von gefrorenen Gasen durch Beschuß mit hochenergetischen

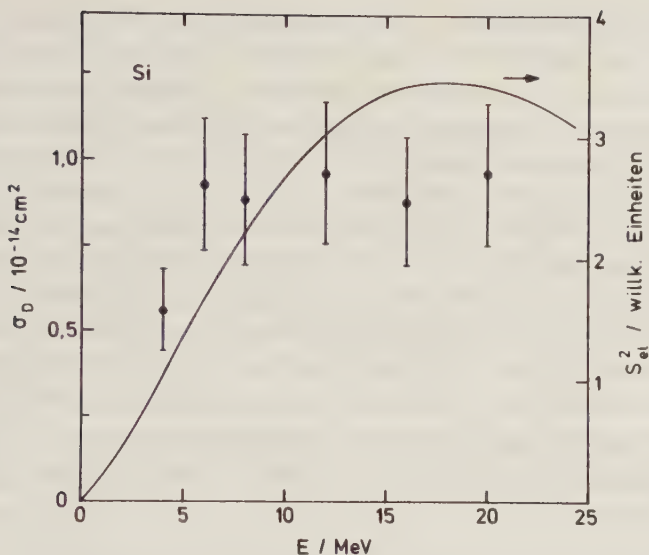


Fig. 6.7: Desorptionsquerschnitt σ_D (Punkte, linke Skala) und das Quadrat des elektronischen Bremsquerschnitts S_{el}^2 (Linie, rechte Skala) in Abhängigkeit von der Energie der Si-Ionen

Ionen beschäftigen (z. B. ^4He , $E = 0,1 - 3 \text{ MeV}$, auf Ar /Be81b/). Es wurde festgestellt, daß die Zerstäubungsrate Y proportional zum Quadrat des elektronischen Bremsquerschnitts S_{el} ist. für diesen Effekt konnte noch keine zufriedenstellende Erklärung gefunden werden. Eine Interpretationsmöglichkeit besteht in der Entstehung eines Ionisationskanals im Target durch das vorbeifliegende Ion. Die abgegebene elektronische Energie wird in Wärmebewegung der Atome umgesetzt, und zwar über einen unbekannten Mechanismus, der schneller als die thermische Ausdehnungszeit des Materials sein soll. Dadurch entsteht kurzzeitig eine Hochtemperaturzone, in der genügend Energie zur Desorption auf die Atome übertragen werden kann. Sigmund und Claussen /Si81/ leiteten einen Formalismus $Y \sim S_{el}^2$ ab. Der kritische Punkt ist dabei die Umsetzung der elektronischen Energie in die Atomschwingung.

7. Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit konnte gezeigt werden, daß in Titan gelöster Wasserstoff (Protium und Deuterium) durch Beschuß mit schweren Ionen (^{12}C , ^{16}O , ^{28}Si und ^{63}Cu) aus dem Metall freigesetzt werden kann, ohne die Löslichkeitseigenschaften des Titans zu verändern. Es war möglich, die Wasserstoffkonzentration fast bis auf Null zu vermindern. Die Desorption fand ausschließlich im Strahlfleck des auftreffenden Ionenstrahls statt, unmittelbar daneben blieb die Wasserstoffkonzentration vollständig erhalten. Da die thermische Desorption bei den verwendeten Targettemperaturen $T < 500\text{ K}$ vernachlässigbar ist, muß es sich um einen Ionenstrahlinduzierten Effekt handeln, der von thermischen Prozessen getrennt betrachtet werden muß.

Durch Betrachtung der Wasserstoffübergänge an den Grenzflächen Vakuum - Titanoberfläche - Titanvolumen wurde ein Modell entwickelt, das das Freisetzen des Wasserstoffs nicht nur qualitativ, sondern auch quantitativ sehr gut beschreibt. Das Modell gibt auch wieder, daß die Desorption um so stärker behindert wird je höher der Druck der Restgasatmosphäre über dem Target ist.

Der Übergang des Wasserstoffs aus dem Titanvolumen an die Titanoberfläche und zurück ist oberhalb $T > 250\text{ K}$ unabhängig vom Ionenstrahl und wird nur durch thermische Diffusion bestimmt. Bei tieferen Temperaturen wird die Ionenstrahlinduzierte Diffusion wichtig. Die Energiedifferenz zwischen den Potentialsenken des Volumens und der Oberfläche wurde zu $\Delta E = (72 \pm 5)\text{ meV}$ ermittelt. Die Sprungfrequenz im Volumen ist um einen Faktor (40 ± 5) größer als an der Oberfläche.

Weiterhin war es möglich, die jeweiligen Einflüsse des Ionenstrahls auf die Desorption des Wasserstoffs von der Titanoberfläche und auf die Diffusion im Titanvolumen bei Targettemperaturen $T < 250\text{ K}$ zu erkennen. Die Desorptionsrate

von der Oberfläche ist proportional zu der Stromdichte des Ionenstrahls, und die Desorptionsquerschnitte betragen für Wasserstoff $\sigma_D = 1 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2$ und $\sigma_{D,G} = 6 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$ für Gasatome mit einer Unsicherheit von ca. $\pm 20\%$.

Variationen der Einschußenergie der Ionen und der Ionensorte ergaben, daß die für die Desorption benötigte Energie aus der elektronischen Bremsung der Ionen resultiert. Der Desorptionsquerschnitt steigt mit größer werdender Kernladungszahl des Projektils. Eine quadratische Abhängigkeit des Desorptionsquerschnitts von der elektronischen Bremsung könnte diesen Effekt erklären.

Schwankungen der Absolutwerte der Ergebnisse zwischen einzelnen Meßreihen können durch unvermeidbare Targetverunreinigungen bei der Präparation erklärt werden. Darüberhinaus ist der Einfluß der Restgasatmosphäre über dem Target nur pauschal zu erfassen. Durch Mittelwertbildung vieler Meßergebnisse konnte dies kompensiert werden.

Die Einschätzung des Kernreaktionsverfahrens als "nicht-destruktive" Methode muß zukünftig differenziert betrachtet werden. Bei der Verwendung hochenergetischer schwerer Ionen kann die Ionenstrahlinduzierte Desorption eine nicht zu vernachlässigende Rolle spielen.

8. Literatur

- /Aj81/ F.Ajzenberg-Selove, Nucl.Phys. A 360(1981)1
- /Aj82/ F.Ajzenberg-Selove, Nucl.Phys. A 375(1982)1
- /Al70/ M.Allab, M.Amiel, A.Amokrane, H.Beaumevieille,
A.Henni und M.Lambert,
Le Journal de Physique 31(1970)919
- /Al78/ G.Alefeld und J.Völkl (Hrsg.): Hydrogen in Metals
I + II, Ser.: Topics in Applied Physics,
Bd. 28 + 29 (Springer, Berlin 1978)
- /An77/ H.H.Andersen und J.F.Ziegler: Hydrogen - Stopping
Powers and Ranges in All Elements
(Pergamon Press, New York 1977)
- /An80/ H.H.Andersen, F.Besenbacher, P.Loftager und W.Möller,
Phys.Rev. A 21(1980)1891
- /An83/ A.Anttila, J.Raeisaenen und J.Keinonen,
Appl.Phys.Lett. 42(1983)498
- /As59/ R.Ash und R.M.Barrer, Phil.Mag. 4(1959)1197
- /Ba80a/ M.I.Baskes, J.Nucl.Mat. 92(1980)318
- /Ba80b/ H.Baumann, U.Behrens, K.Bethge, F.Rauch, H.Schwenk,
B.Streb und W.Strohl in: Nuclear Methods in Material
Research (K.Bethge, H.Baumann, H.Jex und F.Rauch
(Hrsg.), Fr. Viewig&Sohn, Braunschweig 1980)
- /Be67/ H.Beaumevieille, M.Lambert, M.Yaker und A.Amokrane,
Il Nuovo Cimento B 47(1967)139
- /Be73/ D.E.Beck und E.Miyazaki, Surf.Sci. 39(1973)37
- /Be79/ R.Behrisch, J.Nucl.Mat. 85&86(1979)1047
- /Be80/ R.Behrisch in: Proc. Int. Course on Physics of
Plasmas close to Thermonuclear Conditions, Varenna,
Italien 1979, Veröff.: Commission of the European
Communities, Directorate General XII - Fusion
Programme, Brüssel 1980
- /Be81a/ R.Behrisch (Hrsg.): Sputtering by Particle
Bombardment, Ser.: Topics in Applied Physics,
Bd. 47 (Springer, Berlin 1981)
- /Be81b/ F.Besenbacher, J.Böttiger, O.Graversen, J.L.Hansen
und H.Sørensen, Nucl.Instr.Meth. 191(1981)221

- /Be83/ O.Becker, W.Knippelberg und K.Wien,
Physica Scripta T6(1983)117
- /Bl71/ S.D.Bloom und G.D.Sauter, Phys.Rev.Lett. 26(1971)607
- /Bo77/ J.Bohdansky, J.Roth, M.K.Sinha und W.Ottenberger in:
Proc. 2nd Conf. on Surface Effects on Controlled
Fusion Devices, San Francisco, USA 1976
(North-Holland, Amsterdam 1977) S. 115
- /Bø78a/ J.Bøttiger, J.Nucl.Mat. 78(1978)161
- /Bø78b/ P.Børgesen, J.Bøttiger und W.Möller,
J.Appl.Phys. 49(1978)4401
- /Br83/ E.Brauer, R.Gruner und F.Rauch,
Ber.Bunsenges.Phys.Chem. 87(1983)341
- /Bu80/ L.D.Bustard, R.M.Cotts und E.F.W.Seymour,
Phys.Rev. B 22(1980)12
- /Ca68/ G.Carter und J.S.Colligon: Ion Bombardment of Solids
(Heinemann, London 1968) S. 316
- /Ch74/ W.T.Chandler und R.J.Walter in: Proc. Hydrogen
Economy Miami Energy Conf. (T.N.Veziroglu (Hrsg.)),
Univ. Miami, Coral Gables, Florida, USA 1974) S. 6
- /Di68/ O.Dietzsch, R.A.Douglas, E.Farrelly Pessoa, V.Gomes
Porto, E.W.Hamburger, T.Polga, O.Sala, S.M.Perez und
P.E.Hodgson, Nucl.Phys. A 114(1968)330
- /Di79/ D.Dieumegard, D.Dubreuil und G.Amsel,
Nucl.Instr.Meth. 166(1979)431
- /Do79/ B.L.Doyle und R.S.Peeracy in: Proc. Int. Workshop
on the Analysis of Hydrogen in Solids
(Albuquerque, New Mexico, USA 1979)
- /Dü80/ P.Dück, W.Treu, W.Galster, H.Fröhlich und H.Voit,
Nucl.Instr.Meth. 168(1980)601
- /Ec78/ J.L'Ecuyer, C.Brassard, C.Cardinal und B.Terreault,
Nucl.Instr.Meth. 149(1978)271
- /Ec79/ J.L'Ecuyer, J.A.Davies und N.Matsunami,
Nucl.Instr.Meth. 160(1979)337
- /Er76/ S.K.Erents in: Proc. Int. Conf. on Applications of
Ion Beams to Materials, Warwick, Großbritannien 1975
(Institute of Physics Conference Series No. 28,
1976) S. 318

- /F173/ S.Fiarman und W.E.Meyerhof, Nucl.Phys. A 206(1973)1
- /Fr76/ E.Fromm und E.Gebhardt (Hrsg.): Gase und Kohlenstoff in Metallen (Springer, Berlin 1976)
- /Ga81/ N.A.Galaktionowa: Hydrogen-Metal Systems Databook (A.Abraham (Hrsg.), Ordentlich Publ., Holon, Israel, 2. Aufl. 1981)
- /Go64/ H.Goretzki, H.Bittner und H.Nowotny, Mh.Chem. 95(1964)1521
- /Go67/ H.Goretzki, Die Naturwissenschaften 54(1967)163
- /Gr78/ H.R.Gray, H.G.Nelson, R.E.Johnson, W.B.McPherson, F.S.Howard und J.H.S.Wisher, Int. J. of Hydrogen Energy 3(1978)105
- /Gr79/ D.M.Gruen, in /Li79a/, S. 343
- /Ha76/ D.J.Harra, J.Vac.Sci.Technol. 13(1976)471
- /Hö76/ G.Hörz, in /Fr76/, S. 115
- /Hu75/ M.Hufschmidt, V.Heintze, W.Möller und D.Kamke, Nucl.Instr.Meth. 124(1975)573
- /Ja57/ N.Jarmie und J.D.Seagrove (Hrsg.): Los Alamos Scientific Laboratory Report LA - 2014 (1957)
- /Jo72/ W.Jost und K.Hauffe: Diffusion - Methoden der Messung und Auswertung (Steinkopff, Darmstadt 1972)
- /Jo83a/ R.E.Johnson und M.Inokuti, Nucl.Instr.Meth. 206(1983)289
- /Jo83b/ R.E.Johnson und B.Sundqvist, Int. J. Mass Spectr. Ion Phys. 53(1983)337
- /Ka60/ E.Kashy, R.R.Perry und J.R.Risser, Phys.Rev. 117(1960)1289
- /Ka79/ B.Kasemo und E.Törnqvist, Appl.Surf.Sci. 3(1979)307
- /Ku83/ W.Kunz, H.Münzel, U.Helfrich und H.Horneff, Z. Metallkunde 74(1983)289
- /La70/ H.Lacek und U.Strohbusch, Z. Physik 233(1970)101
- /Le73/ D.A.Leich und T.A.Tombrello, Nucl.Instr.Meth. 108(1973)67
- /Le77/ C.Lehmann: Interaction of Radiation with Solids and Elementary Defect Production, in Ser.: Defects in Crystalline Solids, Bd. 10 (S.Amelinckx, R.Gevers und J.Nihoul (Hrsg.), North-Holland, Amsterdam 1977)

- /Li79a/ G.G.Libowitz und M.S.Whittingham (Hrsg.): Material Science in Energy Technology (Academic Press, New York 1979)
- /Li79b/ G.G.Libowitz, in /Li79a/, S. 439
- /Ma68/ F.Machali, Z.A.Saleh, A.T.Baranik, F.Asfour, I.Boundouk und V.E.Storizhko, Atomkernenergie 13(1968)29
- /Ma77/ J.W.Mayer und E.Rimini (Hrsg.): Ion Beam Handbook for Material Analysis (Academic Press, New York 1977)
- /Ma78/ E.S.Marmar, J.Nucl.Mat. 76/77(1978)59
- /Mc63/ A.McNabb und P.K.Foster, Trans.Metall.Soc.AIME 227(1963)618
- /Mc73/ R.B.McLellan und W.A.Oates, Acta Met. 21(1973)181
- /Mc75/ G.M.McCracken, Rep.Prog.Phys. 38(1975)241
- /Me64/ D.Menzel und R.Gomer, J.Chem.Phys. 41(1964)3311
- /Mo69/ J.M.Morabito Jr., R.F.Steiger und G.A.Somorjai, Phys.Rev. 179(1969)638
- /Mö75/ W.Möller, Dissertation (Univ. Bochum 1975)
- /Mö77a/ W.Möller, M.Hufschmidt und D.Kamke, Nucl.Instr.Meth. 140(1977)157
- /Mö77b/ W.Möller, J.Appl.Phys. 48(1977)893
- /Mö81/ W.Möller, Th.Pfeiffer und M.Schluckebier, Nucl.Instr.Meth. 182/183(1981)297
- /Mö83/ W.Möller, Nucl.Instr.Meth. 209/210(1983)773
- /Mu68/ W.M.Mueller, J.P.Blackledge und G.G.Libowitz (Hrsg.): Metal Hydrides (Academic Press, New York 1968)
- /Mu81/ K.Muskalla, Th.Pfeiffer und W.Möller, Thin Solid Films 76(1981)259
- /Mu84/ K.Muskalla, Dissertation (Univ. Bochum 1984)
- /My79/ S.M.Myers, S.T.Picraux und R.E.Stoltz, J.Appl.Phys. 50(1979)5710
- /No70/ L.C.Northcliffe und R.F.Schilling, Nucl. Data Tables A7 (1970)
- /Ou74/ R.A.Outlaw und F.J.Brock, J.Vac.Sci.Technol. 11(1974)532
- /Pf80/ Th.Pfeiffer, Dissertation (Univ. Bochum 1980)
- /Po80/ A.E.Pontau, K.L.Wilson, F.Greulich und L.G.Haggmark, J.Nucl.Mat. 91(1980)343

- /Ro73/ W.M.Robertson, Z. Metallkunde 64(1973)436
- /Ro80a/ J.Roth, W.Eckstein und J.Bohdansky,
Rad.Eff. 48(1980)231
- /Ro80b/ J.Roth, B.M.U.Scherzer, R.S.Blewer, D.K.Brice,
S.T.Picraux und W.R.Wampler,
J.Nucl.Mat. 93&94(1980)601
- /Ro81a/ J.Roth, J.Nucl.Mat. 103&104(1981)291
- /Ro81b/ J.B.Roberto, R.C.Isler, S.Kasai, L.E.Murray,
J.E.Simpkins, S.P.Withrow und R.A.Zuhr,
J.Nucl.Mat. 103&104(1981)531
- /Sa83/ G.Saemann-Ischenko und W.Schmidt,
Nucl.Instr.Meth.Phys.Res. 218(1983)757
- /Sc73/ C.W.Schoenfelder und J.W.Swisher,
J.Vac.Sci.Technol. 10(1973)532
- /Sc79/ B.M.U.Scherzer, R.S.Blewer, R.Behrisch, R.Schulz,
J.Roth, J.Borders und R.Langley,
J.Nucl.Mat. 85&86(1979)1025
- /Sc80a/ R.Schulz, R.Behrisch und B.M.U.Scherzer,
Nucl.Instr.Meth. 168(1980)295
- /Sc80b/ M.Schluckebier, Diplomarbeit (Univ. Bochum 1980)
- /Sc84/ W.Schmülling, Diplomarbeit (Univ. Bochum 1984)
- /Sh74a/ K.K.Shah und D.L.Johnson in: Proc. Int. Conf. on
Hydrogen in Metals, Seven Springs, PA, USA 1973,
(I.M.Bernstein und A.W.Thompson (Hrsg.), American
Society for Metals, Metals Park, Ohio, USA 1974)
- /Sh74b/ K.Shimizu und H.Kawakatsu,
Jap.J.Appl.Phys. 13(1974)1161
- /Si56/ S.S.Sidhu, LeRoy Heaton und D.D.Zauberis,
Acta Cryst. 9(1956)607
- /Si78/ R.Sizmann, J.Nucl.Mat. 69&70(1978)386
- /Si81/ P.Sigmund und C.Claussen, J.Appl.Phys. 52(1981)990
- /St61/ B.Stalinski, C.K.Coogan und H.S.Gutowsky,
J.Chem.Phys. 34(1961)231
- /St83/ B.Streb und E.Brauer, Z. Metallkunde 74(1983)680
- /Th76/ A.W.Thompson und I.M.Bernstein (Hrsg.): Effect of
Hydrogen on Behaviour of Materials
(AIME, New York 1976)

- /To83/ T.A.Tombrello,
Nucl.Instr.Meth.Phys.Res. 218(1983)679
- /To84/ T.A.Tombrello,
Nucl.Instr.Meth.Phys.Res. B 1(1984)23
- /Uc83a/ H.Uchida und E.Fromm,
J. Less-Common Metals 95(1983)139
- /Uc83b/ H.Uchida und E.Fromm,
J. Less-Common Metals 95(1983)147
- /Va70/ C.Varelas und J.Biersack,
Nucl.Instr.Meth. 79(1970)213
- /Vö75/ J.Völkl und G.Alefeld in: Diffusion in Solids,
Recent Developments (A.S.Nowick und J.J.Burton
(Hrsg.), Academic Press, New York 1975)
- /We78/ R.C.Weast und M.J.Astle (Hrsg.): CRC Handbook of
Chemistry and Physics (CRC Press, Palm Beach,
Florida, USA, 59. Aufl. 1978)
- /Wi78/ R.Wiswall, in /Al78/, S. II/201
- /Yo60/ J.R.Young, J.Appl.Phys. 31(1960)921

Ich danke Herrn Prof. Dr. D. Kamke für die Anregung dieser Arbeit, für sein förderndes Interesse am Fortgang der Untersuchungen und für die Bereitstellung der experimentellen Hilfsmittel.

Mein außerordentlicher Dank für die stetige Hilfe während der Durchführung der Messungen und für viele anregende Gespräche gilt den Herren Dipl. Phys. K. Muskalla, cand. phys. W. Schmülling und insbesondere Dr. Th. Pfeiffer.

Weiterhin waren mit ihrem technischen Geschick viele Angestellte des Instituts und des Dynamitron-Tandem-Laboratoriums (DTL) wesentlich am Fortgang dieser Arbeit beteiligt, für die ich stellvertretend die Herren Dipl. Phys. K. Brand (DTL), K. Becker und W. Müller (mechanische Werkstatt), H. Presler (Schlosserei), B. Niesler (Elektronik) und B. Hippert (Targetlabor) nennen möchte.

Schließlich bin ich für die tatkräftige Unterstützung bei den Vorbereitungen zum Druck dieser Arbeit Frau D. Hiltcher und Frau D. Runzer zu besonderem Dank verpflichtet.

Lebenslauf

Am 17. Dezember 1955 wurde ich als Sohn des Speditionskaufmanns Helmut Schluckebier und seiner Ehefrau Felicitas, geb. Wendtland, in Gevelsberg geboren.

Nach vierjährigem Besuch der Gemeinschaftsschule in Ennepetal-Altenvoerde wurde ich 1966 am Reichenbach-Gymnasium in Ennepetal aufgenommen, wo ich 1974 die Reifeprüfung ablegte.

Anschließend nahm ich mein Studium der Physik an der Ruhr-Universität Bochum auf. Nach bestandener Diplom-Vorprüfung im Oktober 1976 begann ich im Herbst 1978 mit meiner Diplomarbeit (Thema: Polymerisation adsorbierter Kohlenwasserstoffe unter Beschuß mit leichten Ionen der Energie 100 - 400 keV). Im September 1980 legte ich die Diplomprüfung ab.

Am Institut für Experimentalphysik I der Ruhr-Universität Bochum war ich ab Oktober 1980 für vier Jahre als wissenschaftliche Hilfskraft tätig.

